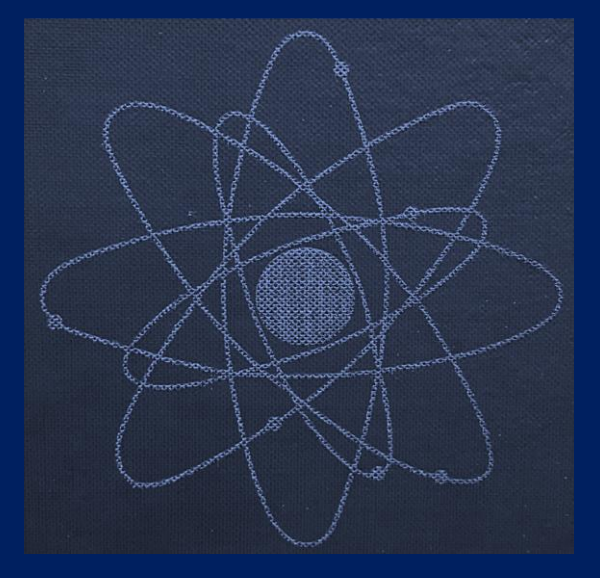
Karl Heinrich Lieser

Einführung in die Kernchemie



Herausgegeben von
Karl Heinrich Lieser

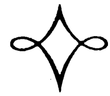
Verlag Chemie

Karl Heinrich Lieser

Einführung in die Kernchemie

Kernchemie in Einzeldarstellungen

Herausgegeben von Karl Heinrich Lieser



Einführung in die Kernchemie

von Prof. Dr. rer. nat. Karl Heinrich Lieser
Lehrstuhl für Kernchemie TH Darmstadt

Kernchemie in Einzeldarstellungen Band 1

Verlag Chemie GmbH 1969

Mit 230 Abbildungen und 107 Tabellen

LIBRARY OF CONGRESS CATALOG CARD NUMBER 79-96415

Printed in Germany

Satz: Helmut Becker, Bad Soden; Druck: Passavia Passau; Verlagsnummer: 6993

Vorwort

Die Kernwissenschaften sind der jüngste Zweig der Naturwissenschaften. Am zweckmäßigsten unterteilt man sie in Kernphysik, Kernchemie und Kerntechnik. Während in der Kernphysik die physikalischen Eigenschaften der Atomkerne im Vordergrund des Interesses stehen, beschäftigt sich die Kernchemie mit den chemischen Aspekten der Kernwissenschaften — d. h. mit allen stofflichen Veränderungen, bei denen die Eigenschaften der Atomkerne (z. B. ihre Umwandlungen) eine wesentliche Rolle spielen. Kernphysik und Kernchemie stehen somit in einem engen Zusammenhang und bilden die Grundlage für die Entwicklung der Kerntechnik.

Die hier benutzte Abgrenzung der Kernchemie hat sich noch nicht allgemein eingebürgert. Oft werden die beiden Bezeichnungen Kernchemie (englisch „nuclear chemistry") und Radiochemie (englisch „radiochemistry") nebeneinander verwendet. Unter Kernchemie im engeren Sinne versteht man die Chemie der Kernreaktionen und unter Radiochemie die Chemie der Radionuklide. Es besteht aber Übereinstimmung, daß diese Teilgebiete sehr eng miteinander verflochten sind.

Verwandt mit der Kernchemie ist das Gebiet der Strahlenchemie (englisch „radiation chemistry" — nicht zu verwechseln mit „radiochemistry"), in der die chemischen Effekte unter dem Einfluß ionisierender Strahlen untersucht werden. Die Strahlenchemie wird im allgemeinen gesondert behandelt.

Die Konzeption dieses Buches geht auf den Wunsch zurück, das gesamte Arbeitsgebiet der Kernchemie im Rahmen einer Einführung in deutscher Sprache darzustellen. Die Grundlagen sind durch einen Vorlesungszyklus gegeben, der seit etwa 10 Jahren an der Technischen Hochschule Darmstadt läuft. Das Buch ist in erster Linie auf die Interessen des Chemikers ausgerichtet, was nicht bedeuten soll, daß es nicht auch für andere Naturwissenschaftler nützlich ist. Bei der Abfassung des Manuskripts wurde großer Wert darauf gelegt, die Arbeits-

gebiete der Kernchemie in übersichtlicher und auch für den Anfänger verständlicher Form darzustellen und die Zusammenhänge zwischen den einzelnen Arbeitsgebieten aufzuzeigen. Entsprechend der Betrachtungsweise des Chemikers wird bei der Behandlung des Stoffes bevorzugt von dem experimentell beobachteten Sachverhalt ausgegangen; im Anschluß daran werden die zum Verständnis erforderlichen Ergebnisse der Theorie besprochen.

Ausgangspunkt der Betrachtung ist das Periodensystem der Elemente (Kap. 1). Die für die Beherrschung der Kernchemie notwendigen physikalischen Grundlagen werden in Kapitel 2 behandelt. Kapitel 3 und 4 beschäftigen sich mit demEinfluß der Massenzahl auf das chemische Verhalten (Isotopieeffekte) und mit den darauf basierenden Verfahren der Isotopentrennung. Einen gewissen Schwerpunkt der Betrachtung bildet Kapitel 5, in dem die Gesetze des radioaktiven Zerfalls behandelt werden, einen zweiten Schwerpunkt Kapitel 8, das sich mit den Kernreaktionen beschäftigt. Die chemischen Effekte von Kernreaktionen sind in einem besonderen Kapitel behandelt (Kap. 9). Die damit teilweise in enger Berührung stehenden strahlenchemischen Reaktionen werden nur kurz besprochen (Kap. 10). In den folgenden Kapiteln kommen die verschiedenen Arbeitsgebiete der Kernchemie zur Sprache. Den für die Kernchemie unentbehrlichen Großgeräten ist ein besonderes Kapitel gewidmet (Kap. 12). In Kapitel 15 sind die vielfältigen Anwendungen zusammengefaßt.

Am Ende eines jeden Kapitels befinden sich Literaturhinweise für den Leser, der sich eingehender über einzelne Abschnitte orientieren möchte, sowie einige Übungen, die ebenfalls in erster Linie den Bedürfnissen des Chemikers Rechnung tragen sollen. Die Literaturhinweise sind nach ihrer Bedeutung für den Leser und nach der Behandlung des Stoffes in den einzelnen Abschnitten geordnet; Darstellungen mehr allgemeinen Charakters ist der Vorrang gegeben vor Arbeiten über ein spezielles Thema. Die Werte für die Kerneigenschaften der Nuklide (Nuklidmassen, Halbwertzeiten, Zerfallsdaten) sind der neuesten Ausgabe der „Table of Isotopes" (Herausgeber C. M. LEDERER, J. M. HOLLANDER und I. PERLMAN, John Wiley, New York 1967, 6. Auflage) entnommen. Kritisch ausgewählte Daten für den praktischen Gebrauch sind in der Nuklidtabelle (Anhang III) zusammengestellt.

Für freundliche Hinweise möchte ich meinen Fachkollegen danken, für viele wertvolle Diskussionen meinen Mitarbeitern, in erster Linie Herrn Dozenten Dr. H. Elias sowie den Herren Dr. K. Bächmann

und Dr. Ph. Gütlich. Bei der Abfassung des Manuskripts sowie der Anfertigung der Abbildungen und Tabellen wurde ich von Frau Dipl. Chem. Risberg und Frau Dipl. Chem. Maier sehr wirksam unterstützt; außerdem halfen Fräulein Merzbach, Fräulein Kneib, Herr Zuber, Herr Fröhlich, Herr Chang, Herr Mager, Herr Lang und Herr Dr. Jacobson. Allen genannten Mitarbeitern bin ich zu Dank verpflichtet. Die gute Zusammenarbeit mit dem Verlag möchte ich besonders hervorheben.

Für Hinweise und Vorschläge bin ich jederzeit dankbar.

November 1967 K. H. LIESER

Inhalt

Berichtigung

Auf Seite 10, Zeile 5, sollte es heißen:

»Bei einigen Elementen tritt nicht mehr als *eine stabile* Atomart auf, z. B. bei Be, F, Na, Al, P, J, Cs (Reinelemente). Von allen Elementen sind aber im allgemeinen *mehrere instabile* Isotope bekannt, die durch Kernreaktionen erzeugt werden können.«

1. Periodensystem der Elemente und Nuklidkarte

1.1. Radioaktive Stoffe in der Natur

Die Radioaktivität ist eine Eigenschaft vieler Stoffe, die in der Natur vorkommen. Sie war allerdings bis zum Jahre 1896 unbekannt, insbesondere deshalb, weil der Mensch kein Sinnesorgan besitzt, das auf radioaktive Stoffe anspricht. Die Radioaktivität wurde 1896 entdeckt, als BECQUEREL feststellte, daß photographische Platten durch Uransalze geschwärzt werden. Kurze Zeit später, 1898, fanden M. CURIE in Frankreich und G. C. SCHMIDT in Deutschland beim Thorium ähnliche Eigenschaften. Mme. CURIE stellte Unterschiede in der Radioaktivität von Uran- und Thoriumverbindungen verschiedener Herkunft fest und schloß daraus, daß diese Stoffe unbekannte radioaktive Elemente enthielten. Zusammen mit PIERRE CURIE entdeckte sie 1898 das Polonium (das sie nach ihrer Heimat Polen benannte) und noch im gleichen Jahre das Radium.

Zum Nachweis der von den radioaktiven Stoffen ausgesandten Strahlung werden heute sog. Detektoren verwendet (z. B. ein Geiger-Müller-Zählrohr) in Verbindung mit einem Anzeigegerät. Eine solche Anordnung (Meßplatz) registriert auch dann eine Strahlung, wenn keine radioaktiven Stoffe in der Nähe sind. Schirmt man den Detektor sorgfältig ab — z. B. durch dicke Wände aus Blei oder Stahl —, so verringert sich die Zahl der pro Zeiteinheit registrierten Impulse (Impulsrate) etwa auf die Hälfte. Bringt man den Detektor in größere Höhen, so findet man erheblich höhere Werte (in 9000 m Höhe etwa die 12fache Impulsrate). Damit ist nachgewiesen, daß ein erheblicher Teil der von dem abgeschirmten Detektor registrierten Strahlung als sog. kosmische Strahlung aus dem Weltraum kommt. Diese kosmische Strahlung besteht primär vorwiegend aus Protonen, die mit sehr hoher Energie in die obersten Schichten der Atmosphäre einfallen. Durch Wechselwirkung mit den Gasmolekülen entsteht sekundär

eine Vielzahl von Teilchen, z. T. in Kaskaden von aufeinanderfolgenden Reaktionen. Man findet Protonen, Photonen, Elektronen, Positronen, μ-Mesonen und Neutronen. Diese Teilchen sind durch ihre Spuren nachweisbar, die sie in photographischen Schichten hinterlassen, welche zu größeren Paketen zusammengepackt und in die Atmosphäre gebracht werden.

Die kosmische Strahlung ist somit ein Bestandteil der Strahlung, der wir ständig ausgesetzt sind. Sie bewirkt im wesentlichen den sog. Untergrund, den alle Detektoren für radioaktive Strahlung zeigen. Der andere Bestandteil des Untergrundes ist die Strahlung der radioaktiven Stoffe in unserer Umgebung. Einige radioaktive Stoffe sind in der Natur weit verbreitet und kommen vor allen Dingen in den Gesteinen und damit auch im Mauerwerk von Gebäuden vor.

Die wichtigsten in der Natur vorkommenden radioaktiven Stoffe sind: Uranerze, Thoriumerze und Kaliumsalze. Die Uran- und Thoriumerze enthalten neben den radioaktiven Elementen Uran und Thorium deren Folgeprodukte, die ebenfalls radioaktiv sind.

Uran und Thorium sind in der Natur verhältnismäßig häufig anzutreffen. Dies beruht im Falle des Urans z. T. darauf, daß dieses Element als U^{VI} aufgelöst und an anderen Stellen wieder abgeschieden wird. Im Granit findet man im Mittel etwa 4 ppm Uran und 13 ppm Thorium.*) Das wichtigste Uranmineral ist die Pechblende (Joachimsthal in Böhmen, Kongo, Kanada, Colorado in den USA); sie besteht im wesentlichen aus U_3O_8. Verhältnismäßig häufig findet man die aus einem Schichtgitter aufgebauten Uranglimmer, die Uranylionen (UO_2^{++}) enthalten.

Das wichtigste Thoriummineral ist der Monazit (Brasilien, Indien, UdSSR, Norwegen, Madagaskar); er ist meist als Monazitsand abgelagert und besteht aus Phosphaten (z. T. auch Silicaten) des Thoriums und der Seltenen Erden. Der Thoriumgehalt des Monazits bewegt sich zwischen 0,1 und 15%. In Tab. 1.1. sind einige Minerale aufgeführt, die Uran und Thorium enthalten.

Kalium besteht aus zwei stabilen und einer radioaktiven Atomart (^{40}K), die mit einer Häufigkeit von 0,0118% vertreten ist. Sie bewirkt die natürliche Radioaktivität aller Kaliumsalze, die zur quantitativen Bestimmung des Kaliums dienen kann.

In Tab. 1.2. sind die in der Natur vorkommenden radioaktiven Atomarten mit Halbwertzeiten $t_{1/2} > 1$ Tag zusammengestellt. Die

*) 1 ppm = 1 part per million = 10^{-6} Gewichtsteile.

Tabelle 1.1.
Minerale, die Uran und Thorium enthalten

Mineral	Zusammensetzung	Gehalt an Uran in %	Gehalt an Thorium in %	Vorkommen
Pechblende	U_3O_8	60—90		Böhmen, Kongo, Colorado (USA)
Becquerelit	$2UO_3 \cdot 3H_2O$	74		Bayern, Kongo
Uraninit	$UO_2 \cdot UO_3$	65—75	0,5—10	Japan, USA, Kanada, Karelien
Broeggerit	$UO_2 \cdot UO_3$	48—75	6—12	Norwegen
Cleveit	$UO_2 \cdot UO_3$	48—66	3,5—4,5	Norwegen, Japan, Texas
Autunit	$Ca(UO_2)_2(PO_4)_2 \cdot nH_2O$	50—60		Frankreich, Madagaskar, Portugal, USA
Carnotit	$K(UO_2)(VO_4) \cdot nH_2O$	≈ 45		USA, Kongo, UdSSR, Australien
Casolit	$PbO \cdot UO_3 \cdot SiO_2 \cdot H_2O$	≈ 40		Kongo
Liebigit	Carbonate des U und Ca	≈ 30		Österreich, UdSSR
Thorianit	$(Th, U)O_2$	4—28	60—90	Ceylon, Madagaskar
Thorit	$ThSiO_4 \cdot H_2O$	1—19	40—70	Norwegen, USA
Monazit	Phosphate des Th und der Seltenen Erden		0,1—15	Brasilien, Indien, UdSSR, Norwegen, Madagaskar

Tabelle läßt erkennen, daß die Radioaktivität bei den schweren Elementen besonders häufig auftritt. Bei den leichteren Elementen ist sie eine Ausnahme, z. B. beim Rubidium (^{87}Rb) und Kalium (^{40}K).

Kohlenstoff-14 (^{14}C) und Tritium(^{3}H) entstehen unter dem Einfluß der kosmischen Strahlung durch Kernreaktionen.*) Sie sind überall in sehr kleinen Mengen vorhanden. Ihre Konzentration hängt von der Vorgeschichte der betreffenden Substanzen ab. ^{14}C besitzt eine Halbwertzeit von 5730 a. Die Messung des ^{14}C-Gehaltes wird häufig zu Altersbestimmungen in kohlenstoffhaltigen (insbesondere organischen) Substanzen herangezogen. Da durch die Explosion von

*) 2,4 Atome ^{14}C pro s und cm^2 Erdoberfläche.

Tabelle 1.2.
In der Natur vorkommende radioaktive Atomarten (Radionuklide) mit Halbwertzeiten $t_{1/2} > 1$ Tag.

Atomart	Halbwertzeit	Strahlung	Isotopenhäufigkeit in %	Bemerkungen
^{238}U (U I = Uran I)	$4{,}51 \cdot 10^9$ a	α, γ, e^-	99,276	Uran-Familie $A = 4n + 2$
^{234}U (U II)	$2{,}47 \cdot 10^5$ a	$\alpha\ (\gamma)$	0,0057	
^{234}Th (UX$_1$)	24,1 d	β^-, γ, e^-		
^{230}Th (Ionium)	$8{,}0 \cdot 10^4$ a	$\alpha, e^-\ (\gamma)$		
^{226}Ra (Radium)	$1{,}602 \cdot 10^3$ a	α, γ, e^-		
^{222}Rn (Radon)	3,82 d	$\alpha\ (\gamma)$		
^{210}Po (RaF)	138,4 d	$\alpha\ (\gamma)$		
^{210}Bi (RaE)	5,0 d	$\beta^-\ (\alpha)$		
^{210}Pb (RaD)	21 a	$\beta^-, \gamma, e^-\ (\alpha)$		
^{235}U (AcU = Actinouran)	$7{,}1 \cdot 10^8$ a	α, γ	0,7196	Actinium-Familie $A = 4n + 3$
^{231}Th (UY)	25,5 h	β^-, γ, e^-		
^{231}Pa (Protactinium)	$3{,}25 \cdot 10^4$ a	α, γ, e^-		
^{227}Th (RdAc = Radioactinium)	18,2 d	α, γ, e^-		
^{227}Ac (Actinium)	21,6 a	$\beta^-, \alpha\ (\gamma), e^-$		
^{223}Ra (AcX = Actinium X)	11,43 d	α, γ, e^-		
^{232}Th (Thorium)	$1{,}41 \cdot 10^{10}$ a	α, γ, e^-	100	Thorium-Familie $A = 4n$
^{228}Th (RdTh = Radiothorium)	1,91 a	$\alpha\ (\gamma), e^-$		
^{228}Ra (MsTh$_1$ = Mesothorium 1)	6,7 a	β^-, e^-		
^{224}Ra (ThX = Thorium X)	3,64 d	α, γ, e^-		
^{209}Bi*)	$> 2 \cdot 10^{18}$ a	α	100	
^{192}Pt	$\lessapprox 10^{15}$ a	α	0,78	
^{190}Pt	$6 \cdot 10^{11}$ a	α	0,0127	
^{187}Re	$4 \cdot 10^{10}$ a	β^-	62,93	
^{180}Ta*)	$> 10^{13}$ a	β^-, K	0,0123	
^{174}Hf	$2 \cdot 10^{15}$ a	α	0,163	
^{176}Lu	$3 \cdot 10^{10}$ a	β^-, γ, e^-	2,60	
^{152}Gd	$1{,}1 \cdot 10^{14}$ a	α	0,20	
^{147}Sm	$1{,}05 \cdot 10^{11}$ a	α	15,07	
^{144}Nd	$2{,}4 \cdot 10^{15}$ a	α	23,87	

Fortsetzung Tabelle 1.2.

Atomart	Halbwertzeit	Strahlung	Isotopenhäufigkeit in %	Bemerkungen
^{138}La	$1{,}12 \cdot 10^{11}$ a	K, β^-, γ	0,089	
^{123}Te*)	$\approx 1{,}2 \cdot 10^{13}$a	K	0,87	
^{115}In	$6 \cdot 10^{14}$ a	β^-	95,77	
^{87}Rb	$5 \cdot 10^{10}$ a	β^-	27,85	
^{50}V	$6 \cdot 10^{15}$ a	β^-, K, γ	0,25	
^{40}K	$1{,}26 \cdot 10^{9}$ a	β^-, K (β^+), γ	0,118	
^{14}C	$5{,}73 \cdot 10^{3}$ a	β^-		entstehen in der Atmosphäre durch kosmische Strahlung
^{10}Be	$2{,}5 \cdot 10^{6}$ a	β^-		
^{7}Be	53 d	K, γ		
^{3}H	12,26 a	β^-		

*) Bei diesen Nukliden ist die Radioaktivität noch nicht mit Sicherheit festgestellt.

Wasserstoffbomben zusätzlich größere Mengen Tritium in Freiheit gesetzt wurden, sind Altersbestimmungen mit Tritium (Halbwertzeit 12,26 a) zum Teil sehr stark gestört (vgl. Abschnitt 15.6.).

Die natürliche Radioaktivität der Minerale ist von großer Bedeutung für die Bestimmung ihres Alters („radioaktive Uhren"). Diese Datierungsmethoden, die insbesondere von PANETH entwickelt wurden, beruhen auf der Bestimmung des Verhältnisses von zwei Atomarten, die in genetischem Zusammenhang stehen (z. B. ^{4}He in Uran, ^{206}Pb neben Uran, ^{208}Pb neben Thorium, ^{40}Ar neben ^{40}K, ^{87}Sr neben ^{87}Rb). Man benötigt dazu sehr empfindliche Meßanordnungen (vgl. Abschnitt 15.6.).

1.2. Periodensystem und Isotopie

Heute sind 104 chemische Elemente bekannt. Die Mannigfaltigkeit ihrer Eigenschaften kann am besten überblickt werden, wenn man das Periodensystem der Elemente zu Hilfe nimmt, das sich sowohl für praktische als auch für theoretische Überlegungen des Chemikers außerordentlich gut bewährt hat. Das Periodensystem der Elemente (Abb. (1–1)) wurde im Jahre 1869 von L. MEYER und D. MENDELEJEFF

GRUPPE →	I	II	III	IV	V	VI	VII	VIII		SCHALE
max. Wertigkeit zu Wasserstoff →	1	2	3	4	3	2	1	0		
max. Wertigkeit zu Sauerstoff →	1	2	3	4	5	6	7	8		
PERIODE ↓										
1	1,00797 1 H								4,0026 2 He	K
2	6,939 3 Li	9,0122 4 Be	10,811 5 B	12,01115 6 C	14,0067 7 N	15,9994 8 O	18,9984 9 F		20,183 10 Ne	L
3	22,9898 11 Na	24,312 12 Mg	26,9815 13 Al	28,086 14 Si	30,9783 15 P	32,064 16 S	35,453 17 Cl		39,948 18 Ar	M
4	39,102 19 K	40,08 20 Ca	44,956 21 Sc	47,90 22 Ti	50,942 23 V	51,996 24 Cr	54,9380 25 Mn	55,847 26 Fe 58,9332 27 Co 58,71 28 Ni		N
	63,54 29 Cu	65,37 30 Zn	69,72 31 Ga	72,59 32 Ge	74,9216 33 As	78,96 34 Se	79,909 35 Br		83,80 36 Kr	
5	85,47 37 Rb	87,62 38 Sr	88,905 39 Y	91,22 40 Zr	92,906 41 Nb	95,94 42 Mo	(99) 43 Tc	101,07 44 Ru 102,905 45 Rh 106,4 46 Pd		O
	107,870 47 Ag	112,40 48 Cd	114,82 49 In	118,69 50 Sn	121,75 51 Sb	127,60 52 Te	126,9044 53 J		131,30 54 Xe	
6	132,905 55 Cs	137,34 56 Ba	138,91 57 La	178,49 72 Hf	180,948 73 Ta	183,85 74 W	186,2 75 Re	190,2 76 Os 192,2 77 Ir 195,09 78 Pt		P
	196,967 79 Au	200,59 80 Hg	204,37 81 Tl	207,19 82 Pb	208,98 83 Bi	210 84 Po	(210) 85 At		222 86 Rn	
7	(223) 87 Fr	226,05 88 Ra	227 89 Ac	104 (Kurtschatovium)						Q

LANTHANIDEN	140,12 58 Ce	140,907 59 Pr	144,24 60 Nd	(145) 61 Pm	150,35 62 Sm	151,96 63 Eu	157,25 64 Gd	158,924 65 Tb	162,50 66 Dy	164,930 67 Ho	167,26 68 Er	168,934 69 Tm	173,04 70 Yb	174,97 71 Lu
ACTINIDEN	232,038 90 Th	231 91 Pa	238,03 92 U	(237) 93 Np	(244) 94 Pu	(243) 95 Am	(248) 96 Cm	(247) 97 Bk	(249) 98 Cf	(252) 99 Es	(253) 100 Fm	(256) 101 Md	(253) 102 No	(257) 103 Lr

Abb. (1–1) Periodensystem der Elemente.

unabhängig voneinander aufgestellt, um die verwandtschaftlichen Beziehungen der Elemente deutlich zu machen. Zunächst waren noch viele freie Felder vorhanden für solche Elemente, deren Entdeckung noch ausstand. Es waren aber wichtige Voraussagen möglich über die Eigenschaften dieser noch nicht bekannten Elemente. Für die genaue Einordnung der Elemente nach ihren Ordnungszahlen leistete die später von MOSELEY (1913) aufgefundene Gesetzmäßigkeit wichtige Dienste. Danach ist die Wurzel aus der Frequenz ν einer bestimmten Serie von Röntgenstrahlen proportional der Ordnungszahl Z,

$$\sqrt{\nu} = a(Z-b). \tag{1.1}$$

(a und b sind Konstanten; b ist für alle Linien einer gegebenen Serie gleich, z. B. b = 1,0 für die K_α-Linien). Das Moseleysche Gesetz ist in Abb. (1–2) dargestellt.

Die nach der Aufstellung des Periodensystems in verstärktem Maße einsetzende Entdeckung neuer Elemente kann in 3 Abschnitte eingeteilt werden, die sich zeitlich überlagern.

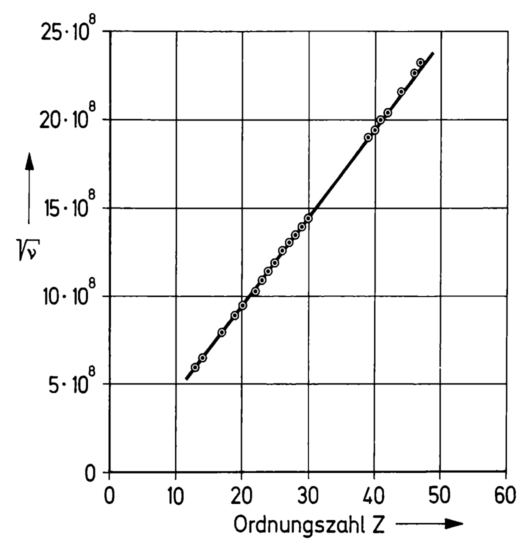


Abb. (1–2) Moseleysches Gesetz: Abhängigkeit der Frequenz ν der K_α-Röntgenlinie von der Kernladungszahl Z.

1. Abschnitt: Entdeckung stabiler Elemente

Ein großer Teil der zunächst noch vorhandenen Lücken im Periodensystem konnte — meist noch im vergangenen Jahrhundert — durch die Entdeckung weiterer Elemente aufgefüllt werden. Dadurch wurden insgesamt 83 Elemente bekannt, die in meßbarer Konzentration auf der Erde anzutreffen sind. Es handelt sich um die Elemente mit den Ordnungszahlen 1 (Wasserstoff) bis 83 (Wismut), ausgenommen die Elemente 43 und 61, außerdem die Elemente 90 (Thorium) und 92 (Uran). Von den stabilen Elementen wurden zuletzt das Hafnium (1922) und das Rhenium (1925) aufgefunden.

2. Abschnitt: Entdeckung der in der Natur vorkommenden radioaktiven Elemente

Die Elemente Uran und Thorium waren bereits seit längerer Zeit bekannt (KLAPROTH 1789 bzw. BERZELIUS 1828). Mit der Aufklärung des radioaktiven Zerfalls dieser Elemente, die vor allen Dingen mit dem Namen des Ehepaars MARIE und PIERRE CURIE verknüpft ist, konnten um die Jahrhundertwende eine Reihe von weiteren Lücken im Periodensystem geschlossen werden. Die neu entdeckten Elemente waren meist nur durch ihre Strahlung nachweisbar; es handelte sich im allgemeinen um sehr geringe, nicht wägbare Mengen. Durch die

mit großer Sorgfalt durchgeführten Untersuchungen wurden in den Zerfallsprodukten des Urans und des Thoriums die Elemente 84 (Po = Polonium), 86 (Rn = Radon), 87 (Fr = Francium), 88 (Ra = Radium), 89 (Ac = Actinium) und 91 (Pa = Protactinium) aufgefunden.

3. Abschnitt: Entdeckung künstlicher Elemente

Nach Abschluß der zweiten Entdeckungsperiode waren noch Lücken bei den Ordnungszahlen 43 und 61 vorhanden. Diese noch fehlenden Elemente konnten künstlich durch Kernreaktionen hergestellt werden. Ebenso wurde das Element 85 (At = Astat) zunächst durch Kernreaktionen gewonnen; später wurde es auch in den Zerfallsreihen des Urans und des Thoriums aufgefunden. Besondere Bedeutung hat die Darstellung der auf das Uran folgenden Glieder der Actiniden erlangt. Bisher konnten folgende Elemente durch Kernreaktionen dargestellt werden: 93 (Np = Neptunium), 94 (Pu = Plutonium), 95 (Am = Americium), 96 (Cm = Curium), 97 (Bk = Berkelium), 98 (Cf = Californium), 99 (Es = Einsteinium), 100 (Fm = Fermium), 101 (Md = Mendelevium), 102 (No = Nobelium), 103 (Lr = Lawrencium), 104 (Vorschlag Kurtschatovium). Die meisten dieser Transuranelemente wurden in Berkeley, Kalifornien, von SEABORG und seinen Mitarbeitern erstmals hergestellt und beschrieben. Man darf damit rechnen, daß in den kommenden Jahren noch einige weitere Elemente bekannt werden, obgleich ihre Darstellung mit immer größeren Schwierigkeiten verknüpft ist und die Halbwertzeiten geringer werden.

Die im zweiten Abschnitt aufgeführten, in der Natur vorkommenden radioaktiven Elemente und die im dritten Abschnitt erwähnten künstlichen Elemente faßt man unter dem Oberbegriff Radioelemente zusammen. Man spricht dann von einem Radioelement, wenn es von diesem Element nur radioaktive, aber keine stabilen Atomarten gibt. Zur Zeit sind 23 Radioelemente bekannt mit den Ordnungszahlen $Z = 43$, $Z = 61$ und $Z > 83$ (84 bis 104).

Möglicherweise waren auch die künstlichen Elemente bei Entstehung der Erde vorhanden und sind dann im Laufe der Zeit wieder zerfallen. Das Alter der Erde beträgt nach unseren bisherigen Kenntnissen etwa $5 \cdot 10^9$ Jahre. Würde man genügend lange warten (etwa 10^6 Jahre), so würde die Gruppe der künstlichen Elemente infolge ihres radioaktiven Zerfalls wieder von der Erde verschwunden sein.

Erst nach einer sehr viel längeren Zeit (etwa 10^{12} Jahre) wären auch die Elemente Uran und Thorium nebst ihren Folgeprodukten — d. h. alle in der zweiten Gruppe genannten natürlich vorkommenden radioaktiven Elemente — praktisch vollständig zerfallen, und das Periodensystem würde beim Element 83 (Wismut) aufhören.

Die Untersuchung der natürlich vorkommenden radioaktiven Elemente führte zu der wichtigen Erkenntnis, daß die Elemente in Form von verschiedenen Atomarten auftreten können, die sich durch ihre Massenzahlen unterscheiden. Bei der Untersuchung der Zerfallsprodukte des Urans und des Thoriums hatte man nämlich 40 verschiedene radioaktive Atomarten gefunden, die unterschiedliche Halbwertzeiten besaßen. Für diese 40 Atomarten standen aber auf Grund ihres chemischen Verhaltens nur 12 Plätze des Periodensystems zur Verfügung. Das Problem wurde im Jahre 1913 durch SODDY gelöst, der vorschlug, jeweils mehrere dieser Atomarten auf dem gleichen Platz des Periodensystems unterzubringen. Damit war der Begriff der Isotopie eingeführt (Isotop = auf dem gleichen Platz). Die isotopen Atomarten unterscheiden sich durch ihre Massenzahlen (d. h. durch ihr Gewicht), nicht aber durch ihre chemischen Eigenschaften. Daß es solche isotopen Atomarten gibt, konnte bald darauf im Massenspektrographen

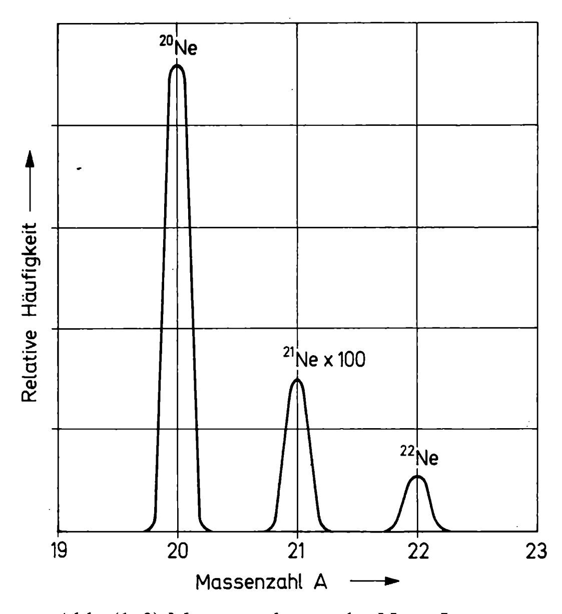


Abb. (1–3) Massenspektrum der Neon-Isotope.

nachgewiesen werden. In Abb. (1–3) ist als Beispiel das Massenspektrum der Neonisotope wiedergegeben.

Man kennt heute von vielen Elementen eine große Zahl von Isotopen, so beim Zinn 10 stabile und 15 instabile (d. h. radioaktive) Isotope, insgesamt also 25. Bei einigen Elementen tritt nur eine stabile Atomart auf, z. B. bei Be, F, Na, Al, P, J, Cs (Reinelemente). Von allen anderen Elementen sind aber im allgemeinen mehrere instabile Isotope bekannt, die durch Kernreaktionen erzeugt werden können.

Die verschiedenen Atomarten, die sich durch ihre Ordnungszahl oder Massenzahl unterscheiden, werden allgemein als Nuklide bezeichnet. Zu ihrer Charakterisierung muß außer dem chemischen Symbol die Massenzahl angegeben werden. Auf Grund einer Empfehlung der Internationalen Union für Reine und Angewandte Chemie (IUPAC) ist es gebräuchlich, die Ordnungszahl Z links unten und die Massenzahl A links oben an das Symbol (z. B. S) zu setzen: ${}^{A}_{Z}S$ oder ${}^{A}S$. Die Angabe der Ordnungszahl ist nicht erforderlich, weil diese durch das chemische Symbol eindeutig definiert ist. Manchmal findet man auch die Massenzahl rechts oben neben dem Symbol; diese Schreibweise ist jedoch für den Chemiker unzweckmäßig, weil in vielen Fällen die Ladung eines Ions rechts oben angegeben werden muß. Im fortlaufenden Text ist es vorteilhaft, die Massenzahl mit einem Bindestrich hinter das Symbol zu setzen, z. B. C–12 an Stelle von ${}^{12}C$.

Zur vollständigen Charakterisierung von radioaktiven Nukliden (oder Radionukliden) sind noch Angaben über die Halbwertzeit sowie über die Art und die Energie der von dem Radionuklid ausgesandten Strahlung erforderlich, z. B.

$$^{3}\mathrm{H} \xrightarrow[12{,}26\,\mathrm{a}]{\beta^{-}(0{,}018\,\mathrm{MeV})} {}^{3}\mathrm{He}.$$

Es liegt auf der Hand, daß das Schema des Periodensystems unzureichend ist, um alle Nuklide einzutragen. Man geht deshalb zur Nuklidkarte über.

1.3. Nuklidkarte

Die Nuklidkarte basiert auf dem Proton-Neutron-Modell der Atomkerne. Die ältere Vorstellung, daß der Kern aus Protonen und Elektronen besteht (Proton-Elektron-Modell) wurde wieder aufgegeben,

weil sie nicht in Übereinstimmung stand mit dem Platzbedarf und dem Spin der Elektronen.

Das Atom besteht aus Kern und Hülle. Die Bestandteile des Kernes — Protonen und Neutronen — werden als Nukleonen bezeichnet. Für die Bindung zwischen diesen Nukleonen gibt es noch keine rest-

Tabelle 1.3.
Proton-Neutron-Modell als Grundlage für den Aufbau der Nuklide
(P = Zahl der Protonen; N = Zahl der Neutronen)

P	N	Nuklid	Bemerkungen
1	–	^{1}H	stabil
1	1	$^{2}H = D$	stabil
1	2	$^{3}H = T$	instabil
2	1	^{3}He	stabil
2	2	^{4}He	stabil
2	3	^{5}He	instabil
2	4	^{6}He	instabil
2	5	^{7}He	instabil
3	2	^{5}Li	instabil
3	3	^{6}Li	instabil
3	4	^{7}Li	stabil
3	5	^{8}Li	instabil
3	6	^{9}Li	instabil
4	3	^{7}Be	instabil
4	4	^{8}Be	instabil
4	5	^{9}Be	stabil
4	6	^{10}Be	instabil
4	7	^{11}Be	instabil
5	3	^{8}B	instabil
5	5	^{10}B	stabil
5	6	^{11}B	stabil
5	7	^{12}B	instabil
5	8	^{13}B	instabil
6	4	^{10}C	instabil
6	5	^{11}C	instabil
6	6	^{12}C	stabil
6	7	^{13}C	stabil
6	8	^{14}C	instabil
6	9	^{15}C	instabil
6	10	^{16}C	instabil

los befriedigende Theorie. Der positiv geladene Kern ist von der negativ geladenen Elektronenhülle umgeben. Der Durchmesser eines Atoms ist von der Größenordnung 10^{-8} cm. Der Durchmesser eines Atomkerns aber beträgt nur 10^{-12} bis 10^{-13} cm. Die Dichte der Atomkerne ist somit von der Größenordnung 10^{14} g/cm^3 (das sind 10^8 Tonnen/cm^3); diese Dichte ist unvorstellbar hoch.

Durch Kombination einer verschiedenen Anzahl von Neutronen und Protonen erhält man verschiedene Atomarten (Nuklide). In Tab. 1.3. sind einige einfache Kombinationsmöglichkeiten angegeben. P ist

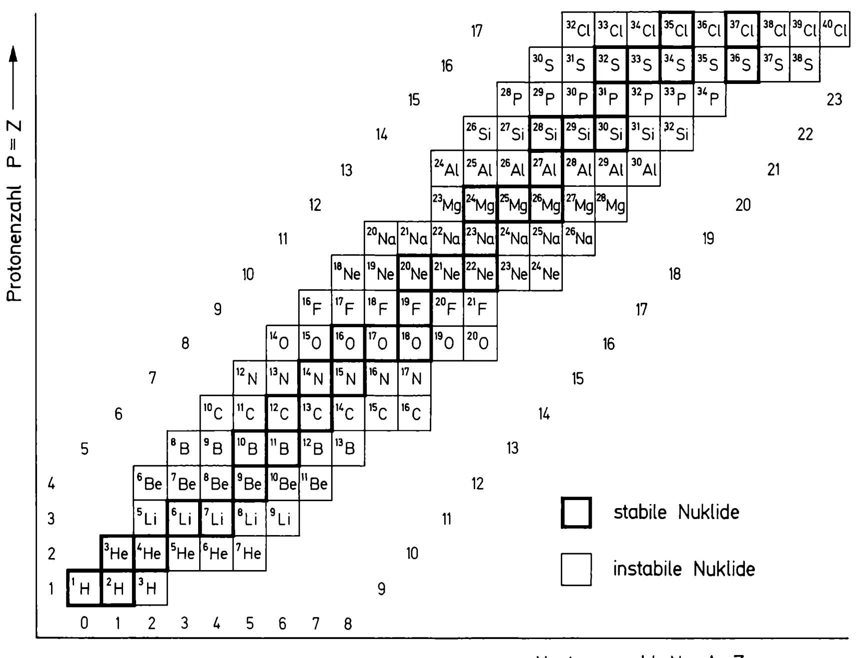


Abb. (1–4) Auszug aus der Nuklidkarte.

die Anzahl der Protonen im Kern, die gleich der Ordnungszahl Z ist (P = Z); N ist die Zahl der Neutronen. Die Summe P + N ist gleich der Massenzahl A (P + N = A; bzw. N = A − Z). In der Nuklidkarte (Abb. (1–4)) ist als Ordinate die Zahl der Protonen und als Abszisse die Zahl der Neutronen aufgetragen. In diese Nuklidkarte lassen sich alle bekannten Nuklide eintragen. Man findet, daß die Nuklide im Bereich der leichteren Elemente dann stabil sind, wenn die Anzahl der Protonen und der Neutronen etwa gleich ist. Zur Zeit sind insgesamt etwa 1300 Nuklide bekannt, die sich auf 104 verschiedene Elemente verteilen. Es gibt 270 stabile Nuklide und 64 bis 71*) natürlich vorkommende radioaktive Nuklide. Von den letzteren treten 46 in den Zer-

fallsreihen des Urans und des Thoriums auf; 18 bis 25*) weitere sind über das Periodensystem verteilt und zum Teil sehr langlebig.

Man kann jeweils bestimmte Nuklide zu Gruppen zusammenfassen und unterscheidet isotope Nuklide, isotone Nuklide und isobare Nuklide. Die Nuklide mit gleicher Protonenzahl (P bzw. Z gleich) heißen Isotope (isotope Nuklide; vgl. Abschn. 1.2.). Die Bezeichnung „Isotope" oder „Radioisotope" wird sehr häufig nicht im ursprünglichen strengen Sinne gebraucht, sondern an Stelle der exakten Bezeichnung „Radionuklide" oder „radioaktive Nuklide". Die isotopen Nuklide stehen in der Nuklidkarte in waagerechten Reihen nebeneinander (vgl. Abb. (1–5)).

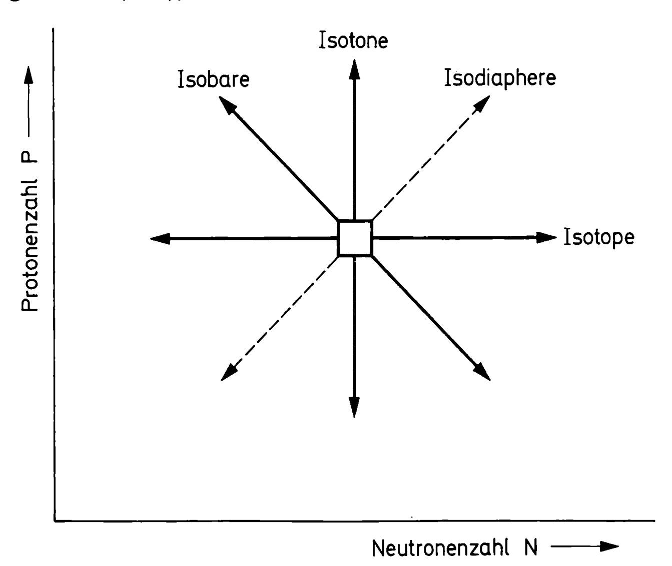


Abb. (1–5) Isotope, Isotone, Isobare (und Isodiaphere) in der Nuklidkarte.

Beispiele:

^{1}H, ^{2}H, ^{3}H

^{108}Sn,..., ^{114}Sn, ^{115}Sn, ^{116}Sn, ^{117}Sn, ^{118}Sn, ^{119}Sn, ^{120}Sn,..., ^{129}Sn

^{227}U,..., ^{232}U, ^{233}U, ^{234}U, ^{235}U, ^{236}U, ^{237}U, ^{238}U, ^{239}U, ^{240}U

Die Nuklide mit gleicher Massenzahl (A bzw. P + N gleich) heißen Isobare (isobare Nuklide). Diese isobaren Nuklide stehen in Diagonalreihen der Nuklidkarte (vgl. Abb. (1–5)).

Beispiele:

^{40}Cl, ^{40}Ar, ^{40}K, ^{40}Ca, ^{40}Sc

^{138}J, ^{138}Xe, ^{138}Cs, ^{138}Ba, ^{138}La, ^{138}Ce, ^{138}Pr

---

*) Bei einigen Nukliden ist die Radioaktivität noch nicht mit Sicherheit nachgewiesen.

Die Nuklide mit gleicher Neutronenzahl (N bzw. A–Z gleich) heißen Isotone (isotone Nuklide). Diese isotonen Nuklide stehen in senkrechten Reihen in der Nuklidkarte (vgl. Abb. (1–5)).
Beispiele:

^{13}B, ^{14}C, ^{15}N, ^{16}O, ^{17}F, ^{18}Ne

^{36}S, ^{37}Cl, ^{38}Ar, ^{39}K, ^{40}Ca, ^{41}Sc, ^{42}Ti

Unter Isodiapheren (isodiaphere Nuklide) versteht man Nuklide mit gleichem Neutronenüberschuß ($A - 2Z = N - Z$ gleich); sie stehen ebenfalls in Diagonalreihen (vgl. Abb. (1–5)).

Außerdem besteht die Möglichkeit, daß man bei dem gleichen Nuklid — d. h. bei gleicher Anzahl von Protonen und Neutronen — unterschiedliche physikalische Eigenschaften findet (verschiedene Halbwertzeit und Energie der Strahlung). In diesem Fall spricht man von isomeren Zuständen oder kurz von Isomeren (Kernisomerie). Es handelt sich dabei um verschiedene Energiezustände desselben Nuklids (vgl. Abb. (1–6)). Der Übergang vom angeregten Zustand des

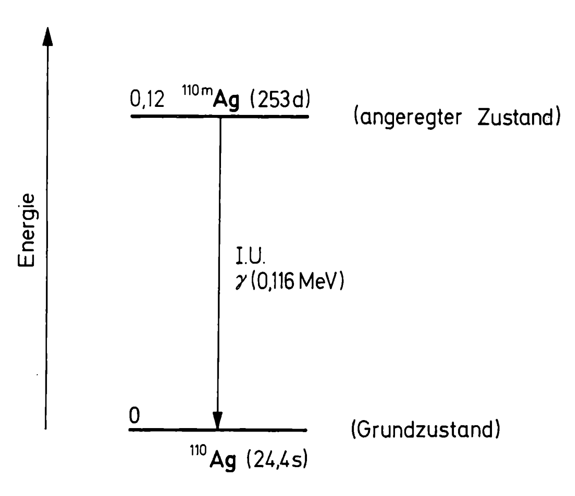


Abb. (1–6) Kernisomerie.

Atomkerns (höhere Energie) zum Grundzustand ist „verboten" (ähnlich wie bei Atomspektren im sichtbaren Bereich); deshalb hat der angeregte Zustand eine gewisse Halbwertzeit, die zwischen dem Bruchteil einer Sekunde und vielen Jahren liegen kann. Oft ist die Halbwertzeit des angeregten Zustandes größer als die des Grundzustandes. Der isomere Kern kann entweder durch Aussendung eines γ-Quants in den Grundzustand übergehen oder direkt durch α- oder β-Zerfall in ein anderes Nuklid. Der angeregte (metastabile) Zustand

wird durch den Index m hinter der Massenzahl gekennzeichnet, z. B. ^{110m}Ag bzw. Ag–110m. Sind mehrere metastabile Zustände vorhanden, so unterscheidet man diese durch die Indizes m_1, m_2. Es sind etwa 250 Fälle der Kernisomerie bekannt.
Beispiele für Isomere:
^{137m}Ba ($t_{1/2}$ = 2,6 min), ^{137}Ba (stabil)
^{234m}Pa (UX_2, $t_{1/2}$ = 1,17 min), ^{234}Pa (UZ, $t_{1/2}$ = 6,75 h)
^{124m_2}Sb ($t_{1/2}$ = 21 min), ^{124m_1}Sb ($t_{1/2}$ = 1,5 min), ^{124}Sb ($t_{1/2}$ = 60 d)

1.4. Regeln für die Stabilität der Nuklide

Man unterscheidet stabile Nuklide und instabile (radioaktive) Nuklide oder Radionuklide. Wie bereits in Abschnitt 1.1. dargelegt wurde, kommt eine große Zahl von Radionukliden in der Natur vor. Man findet bei ihnen sehr unterschiedliche Halbwertzeiten. Beispiele für sehr langlebige Radionuklide sind: ^{232}Th ($t_{1/2}$ = 1,41 · 10^{10} a), ^{238}U ($t_{1/2}$ = 4,51 · 10^9 a), ^{40}K ($t_{1/2}$ = 1,26 · 10^9 a). Bei ihnen kann man auch in langen Versuchszeiten keine nennenswerte Änderung der Menge oder der Aktivität feststellen. Man nennt sie deshalb auch quasistabil und kann mit ihnen in ähnlicher Weise umgehen wie mit stabilen

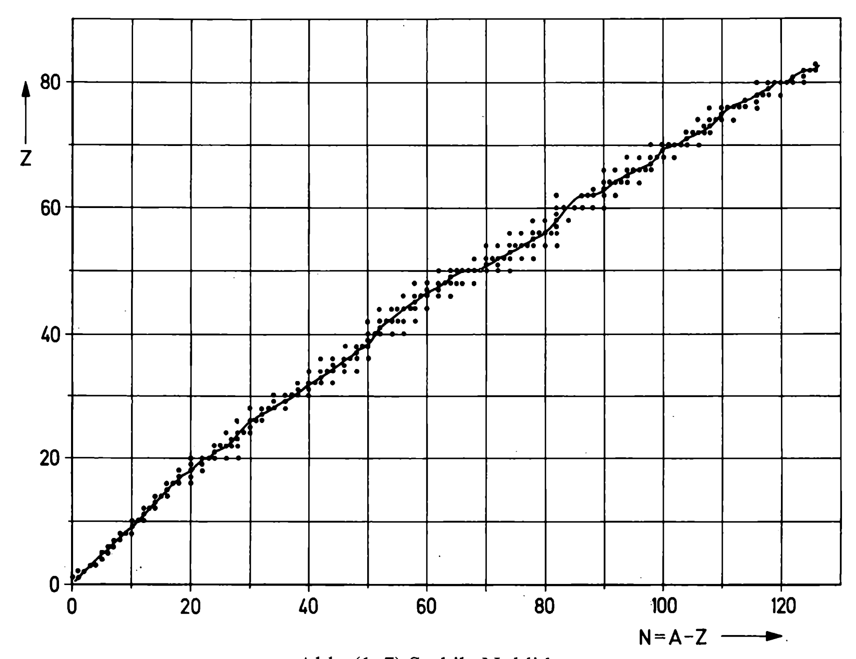


Abb. (1–7) Stabile Nuklide.

Nukliden. Beispiele für kurzlebige Nuklide sind: ^{212}Pb ($t_{1/2} = 10{,}6$ h), ^{223}Fr ($t_{1/2} = 22$ min), ^{216}Po ($t_{1/2} = 0{,}15$ s). Ihre Menge und damit auch ihre Aktivität ändern sich sehr rasch; dies muß man bei chemischen Reaktionen beachten.

Vergleicht man die Protonenzahlen P und Neutronenzahlen N der stabilen Nuklide, so findet man bei den leichteren Nukliden für das Verhältnis N/P Werte von etwa 1, bei den schwereren Nukliden dagegen $N/P > 1$ (vgl. Abb. (1–7)). Mit steigender Ordnungszahl (Protonenzahl) ist ein immer größerer Neutronenüberschuß erforderlich, damit die Nuklide stabil sind. Als Neutronenüberschuß (auch Isotopenzahl genannt) bezeichnet man den Wert A (Massenzahl) – 2 Z. Er beträgt z. B. 0 für ^{4}He, 3 für ^{45}Sc, 11 für ^{89}Y, 25 für ^{139}La und 43 für ^{209}Bi. Verbindet man in der Nuklidkarte die stabilen Nuklide durch eine gemittelte Linie, so steigt diese zunächst unter einem Winkel von 45° an; bei höheren Ordnungszahlen verläuft sie aber erheblich flacher (vgl. Abb. (1–7)). Man nennt diese Linie „Linie der β-Stabilität".

Wie bereits in Abschnitt 1.3. erwähnt, sind insgesamt 270 stabile Nuklide bekannt. Betrachtet man sie entsprechend dem Proton-Neutron-Modell der Atomkerne etwas näher, so kann man folgende Kombinationen unterscheiden:

P gerade, N gerade (g,g-Kerne) — sehr häufig — 162 Nuklide
P gerade, N ungerade (g,u-Kerne) — häufig — 55 Nuklide
P ungerade, N gerade (u,g-Kerne) — häufig — 49 Nuklide
P ungerade, N ungerade (u, u-Kerne) — selten — nur 5 Nuklide
($^{2}_{1}H$, $^{6}_{3}Li$, $^{10}_{5}B$, $^{14}_{7}N$, $^{180}_{73}Ta$)

Diese ungleichmäßige Verteilung von Protonen und Neutronen widerspricht den Gesetzen der Statistik; aus der großen Häufigkeit von Nukliden mit gerader Protonenzahl P und gerader Neutronenzahl N (g,g-Kerne) muß man schließen, daß diese Kombination besonders stabil ist. Die Nuklide mit ungerader Protonenzahl P und ungerader Neutronenzahl N (u,u-Kerne) kann man als Ausnahmen ansehen. (Einige Nuklide mit dieser Kombination haben wir als Radionuklide kennengelernt, die in der Natur vorkommen, z. B. $^{40}_{19}K$, $^{138}_{57}La$, $^{176}_{71}Lu$). Beim Studium der Nuklidkarte fällt ferner auf, daß bei den Protonenzahlen bzw. Neutronenzahlen P bzw. N = 2, 8, 20, 28, 50, 82, (126) besonders viele stabile Nuklide vorhanden sind. Diese Zahlen werden auch als magische Zahlen bezeichnet. Die große Häufigkeit dieser Protonen- und Neutronenzahlen wird erklärt durch einen schalenförmigen Aufbau der Atomkerne (den man sich ähnlich vor-

zustellen hat wie den schalenförmigen Aufbau der Elektronenhülle). Die Eigenschaften (Häufigkeit, Stabilität, Neutroneneinfang) der Nuklide mit Werten von P bzw. N in unmittelbarer Nähe der magischen Zahlen sprechen ebenfalls für das Schalenmodell des Atomkerns.

Im einzelnen kann man waagerechte Reihen und Diagonalreihen der Nuklidkarte näher diskutieren und kommt dabei zu folgenden Ergebnissen:

a) Waagerechte Reihen (isotope Nuklide)

P gerade { N gerade (g, g-Kerne) — mehrere stabile Isotope
N ungerade (g, u-Kerne) — höchstens 2 stabile Isotope (eine Ausnahme bildet das Zinn: hier finden wir 3 stabile Isotope, ^{115}Sn, ^{117}Sn, ^{119}Sn).

P ungerade { N gerade (u, g-Kerne) — höchstens 2 stabile Isotope
N ungerade (u, u-Kerne) — keine stabilen Isotope (eine Ausnahme bilden die bereits oben genannten Nuklide $^{2}_{1}$H, $^{6}_{3}$Li, $^{10}_{5}$B, $^{14}_{7}$N, $^{180}_{73}$Ta).

Dieser Befund wird als gerade-ungerade Regel („odd-even rule") bezeichnet.

b) Diagonalreihen (isobare Nuklide)

A ungerade { P gerade, N ungerade / P ungerade, N gerade } — nur ein stabiles Nuklid
d. h. diese Nuklide besitzen keine stabilen Isobaren (Ausnahmen liegen vor bei den Massenzahlen A = 113 und A = 123).

A gerade (P gerade, N gerade) — hier treten zwei stabile Isobare auf (ausnahmsweise auch 3 bei den Massenzahlen A = 96, 124, 130, 136).

Dieser Befund wird als Isobarenregel bezeichnet.

Am einfachsten lassen sich die aus der Nuklidkarte erkennbaren Besonderheiten in der Mattauchschen Regel zusammenfassen. Sie lautet: Es gibt keine benachbarten stabilen Isobaren. (Ausnahmen von dieser Regel treten auf bei den Massenzahlen A = 113, 123, 180). Die Mattauchsche Regel besaß große Bedeutung für die Auffindung der natürlich radioaktiven Nuklide. So ist z. B. in den folgenden natürlich

vorkommenden Isobaren-Tripeln das mittlere Nuklid radioaktiv:

$^{40}Ar - ^{40}K - ^{40}Ca$
$^{138}Ba - ^{138}La - ^{138}Ce$
$^{176}Yb - ^{176}Lu - ^{176}Hf$

1.5. Regeln für die Umwandlung von Nukliden

α-Aktivität wird vorwiegend bei Ordnungszahlen $Z=P > 83$ (Bi) gefunden. Unterhalb dieser Ordnungszahl findet man mit wenigen Ausnahmen nur β-aktive Nuklide (bzw. K-Strahler). Die Bevorzugung der α-Aktivität bei den schweren Kernen wird verständlich, wenn man bedenkt, daß diese durch α-Zerfall einen Teil ihrer überschüssigen Masse (2 Protonen und 2 Neutronen) abstoßen können. Die α-Strahler sind in den meisten Fällen verhältnismäßig langlebig.

Ein β-Zerfall führt zu einem isobaren Nuklid; d. h. es tritt keine Änderung der Massenzahl A auf. Dabei wird entweder ein Neutron in ein Proton umgewandelt (β^--Aktivität) oder ein Proton in ein Neutron (β^+-Aktivität oder K-Strahlung). u,u-Kerne (A gerade) gehen dabei über in isobare g,g-Kerne; d. h. die weniger stabile Kombination ungerade-ungerade wird ersetzt durch die stabilere Anordnung gerade-gerade. Diese Umwandlungen werden z. B. auch bei den natürlich radioaktiven Nukliden $^{40}_{19}K$, $^{138}_{57}La$, $^{176}_{71}Lu$ beobachtet.

Zur näheren Diskussion der β-Umwandlung von radioaktiven Nukliden ist es zweckmäßig, auf eine halbempirische Formel für die Bindungsenergie BE von Atomkernen zurückzugreifen (Weizsäker-Formel):

$$BE = E_v + E_c + E_f + E_s + E_\delta. \quad (1.2)$$

Diese Formel basiert auf dem Tröpfchen-Modell des Atomkerns, wobei die Nukleonen die „Moleküle“ dieses Tröpfchens sind, die sich gegenseitig anziehen. Ein solches Tröpfchen hat eine Volumenenergie E_v und eine Oberflächenenergie E_f. Die gegenseitige Abstoßung der Protonen wird durch eine Coulombenergie E_c berücksichtigt. Darüber hinaus enthält die Formel noch eine Symmetrieenergie E_s und einen Energieterm E_δ (auch Paarungsenergie genannt), welcher der hohen Stabilität der g,g-Kerne und der niedrigen Stabilität der u,u-Kerne Rechnung trägt. Die Besonderheiten der magischen Zahlen, die zum Schalenmodell des Atomkerns führten, sind in der Weizsäcker-Formel nicht berücksichtigt.

Der wichtigste Term ist die Volumenenergie E_v. Sie beruht auf der gegenseitigen Anziehung der Nukleonen und steigt mit deren Zahl — d. h. mit der Massenzahl A — an. Rechnet man freiwerdende Energiebeträge mit positivem Vorzeichen, so folgt

$$E_v = +a_v A. \tag{1.3}$$

Die gegenseitige Abstoßung der Protonen bewirkt eine Verringerung der Bindungsenergie um den Betrag

$$E_c = -a_c \frac{Z(Z-1)}{A^{1/3}}. \tag{1.4}$$

Z (Ordnungszahl) ist die Zahl der positiven Ladungen des Atomkerns, $A^{1/3}$ ein Maß für den Radius; d. h. es wird angenommen, daß das Volumen des Kerns mit der Zahl der Nukleonen anwächst — ebenso wie das Volumen eines Flüssigkeitströpfchens mit der Zahl der Moleküle.

Die an der Oberfläche des Kerns befindlichen Nukleonen sind nicht so fest gebunden — ebenso wie die Moleküle an der Oberfläche eines Tröpfchens. Die Oberfläche ist proportional $A^{2/3}$. Die Bindungsenergie verringert sich somit um die Oberflächenenergie

$$E_f = -a_f A^{2/3}. \tag{1.5}$$

Sieht man von der elektrischen Abstoßung der Protonen ab, so findet man, daß Kerne mit gleicher Zahl an Protonen und Neutronen (N=Z) am stabilsten sein sollten. Tatsächlich ist aber bei höheren Ordnungszahlen ein immer größerer Neutronenüberschuß A−2Z erforderlich. Dieser Neutronenüberschuß bewirkt aber eine zusätzliche Verminderung der Bindungsenergie um einen Betrag, der als Symmetrieenergie bezeichnet wird:

$$E_s = -a_s \frac{(A-2Z)^2}{A}. \tag{1.6}$$

Die hohe Stabilität der g,g-Kerne wird durch einen positiven Beitrag zur Bindungsenergie berücksichtigt, die niedrige Stabilität der u,u-Kerne durch einen negativen Beitrag. Für u,g-Kerne und g,u-Kerne wird der Wert Null eingesetzt:

$$E_\delta = \begin{cases} +\ \delta\,(\mathrm{A}, \mathrm{Z}) & \text{für g, g-Kerne} \\ \ \ 0 & \text{für g, u- und u, g-Kerne} \\ -\ \delta\,(\mathrm{A}, \mathrm{Z}) & \text{für u, u-Kerne} \end{cases} \qquad (1.7)$$

Näherungsweise ist $\delta \approx \frac{a_\delta}{A}$.

Aus den experimentell bestimmten Nuklidmassen ergeben sich für die Konstanten folgende Zahlenwerte: $a_v \approx 14{,}1$ MeV, $a_c \approx 0{,}585$ MeV, $a_f \approx 13{,}1$ MeV, $a_s \approx 19{,}4$ MeV, $a_\delta \approx 135$ MeV.

Die Kurve für die Bindungsenergie *BE* bei einer bestimmten Massenzahl A als Funktion der Ordnungszahl Z hat die Form einer Parabel. Wenn die Massenzahl ungerade ist, erhält man jeweils eine Kurve ($E_\delta = 0$), wenn die Massenzahl gerade ist, jeweils 2 Kurven. Die Öffnung der Parabeln steigt mit wachsender Massenzahl an; d. h. die Unterschiede hinsichtlich der Bindungsenergie zwischen benachbarten Isobaren werden kleiner. Aus den experimentellen Werten folgt als Näherungsformel für die Berechnung des Scheitelpunktes Z_A der Parabeln

$$Z_A = \frac{A}{1{,}98000 + 0{,}01493\,A^{2/3}}. \qquad (1.8)$$

Der stabilste Kern der betreffenden Isobarenreihe besitzt die Ordnungszahl, die diesem Wert am nächsten liegt. Trägt man die Werte für Z_A als Funktion der Massenzahl A in die Nuklidkarte ein, so erhält man die Linie der β-Stabilität („Tal der stabilen Kerne").

In Abb. (1–8) ist als Beispiel die Bindungsenergie für die Massenzahl $A = 73$ aufgezeichnet. Da freiwerdende Energiebeträge positiv gerechnet werden, entspricht bei dieser Aufzeichnung das Minimum (höchste Bindungsenergie) dem stabilsten Zustand. Das stabilste Nuklid in dieser Isobarenreihe ist das $^{73}_{32}$Ge. Die Nuklide mit Ordnungszahlen $Z > 32$ wandeln sich durch β^+-Zerfall in ^{73}Ge um, die Nuklide mit Ordnungszahlen $Z < 32$ gehen durch β^--Zerfall in ^{73}Ge über. Je weiter die Nuklide vom tiefsten Punkt der Energie-Parabel entfernt sind, um so kürzer ist im allgemeinen die Halbwertzeit der Umwandlung.

In Abb.(1–9) ist die Bindungsenergie für die Massenzahl $A = 64$ aufgetragen. Es ergeben sich 2 Kurven, die untere Kurve für g,g-Kerne und die obere für u,u-Kerne. Die stabilsten Nuklide in dieser Isobarenreihe sind ^{64}Ni und ^{64}Zn. Die Art der Umwandlungen ist in Abb.

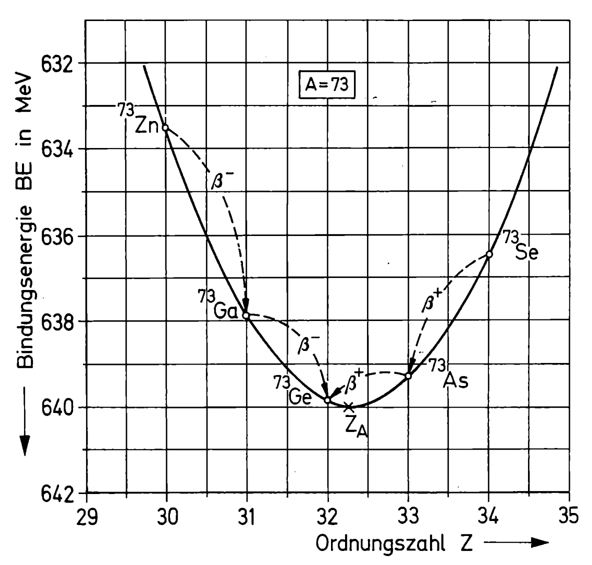


Abb. (1–8) Bindungsenergien und radioaktiver Zerfall für Nuklide mit ungerader Massenzahl (A = 73).

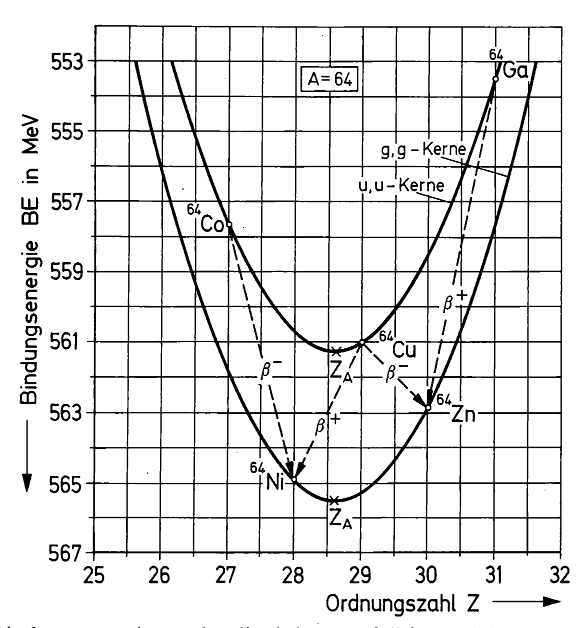


Abb. (1–9) Bindungsenergien und radioaktiver Zerfall für Nuklide mit gerader Massenzahl (A = 64).

(1—9) eingezeichnet. Für das ^{64}Cu ergeben sich zwei Möglichkeiten: Es kann durch β^+-Umwandlung in ^{64}Ni übergehen oder durch β^--Umwandlung in ^{64}Zn. In ähnlicher Weise findet man für alle u,u-

Kerne, die sich auf der Linie der β-Stabilität — d. h. im Tal der Kurve für die Bindungsenergie — befinden, eine gewisse Wahrscheinlichkeit für eine β^--Umwandlung und eine gewisse Wahrscheinlichkeit für eine β^+- oder K-Umwandlung (z. B. ^{40}K, ^{64}Cu, ^{74}As, ^{102}Rh u. a.).

1.6. Massenzahl und Nuklidmasse

Die Massenzahl A gibt die Zahl der Nukleonen an (A=N+P); d. h. sie ist stets eine ganze Zahl. Die Nuklidmasse M dagegen ist die wahre Masse der Nuklide in atomaren Masseneinheiten (ame).

Früher bestand ein Unterschied zwischen der physikalischen und der chemischen Atomgewichtsskala. Die physikalische Einheit wurde auf das Sauerstoffisotop ^{16}O bezogen (Masse ^{16}O = 16,000000 Einheiten), die chemische Einheit auf das natürliche Gemisch der Sauerstoffisotope. Das chemische Atomgewicht des Sauerstoffs entsprach in der physikalischen Atomgewichtsskala der Summe der Häufigkeiten der einzelnen Sauerstoffisotope, multipliziert mit der jeweiligen Masse: $0{,}99759 \cdot 16{,}000000 + 0{,}00037 \cdot 17{,}004507 + 0{,}00204 \cdot 18{,}004875 = 16{,}004462$ ame (atomare Masseneinheiten). Der Umrechnungsfaktor von der physikalischen Atomgewichtsskala in chemische Atomgewichte betrug somit $16{,}000000 : 16{,}004462 = 0{,}999721 \pm 0{,}000005$ (der Fehler beruhte auf der Unsicherheit hinsichtlich der Isotopenzusammensetzung des Sauerstoffs).

1960 bzw. 1961 wurde eine neue Atomgewichtsskala eingeführt, die auf dem Kohlenstoffisotop ^{12}C basiert (Masse ^{12}C = 12,000000 Einheiten). Die Vorteile dieser neuen Festlegung sind: In der Physik und in der Chemie wird nunmehr die gleiche Skala verwendet; die durch die Schwankungen der Isotopenzusammensetzung des natürlichen Sauerstoffs verursachte Unsicherheit hinsichtlich der früheren chemischen Atomgewichte ist beseitigt. Der Unterschied zwischen der alten chemischen Atomgewichtsskala und der neuen Skala ist sehr gering; die alten chemischen Atomgewichte sind nur um etwa 0,005% kleiner als die neuen Nuklidmassen, während die alten physikalischen Atomgewichte etwa um 0,0318% größer sind. Es ist 1 ame (^{12}C)=1,00031792 ame (^{16}O); daraus folgt für den Umrechnungsfaktor M (^{12}C) = 0,999682218 M (^{16}O).

In Tab. 1.4. sind einige Nuklidmassen in alten und in neuen Einheiten zusammengestellt. In der Nuklidmasse ist stets auch die Masse der Elektronen des neutralen Atoms enthalten, d. h. Nuklidmasse=

Masse des Kerns +Masse der Elektronen. Eine atomare Masseneinheit (ame) entspricht $1{,}66044 \cdot 10^{-24}$ g.

Tabelle 1.4.
Nuklidmassen in atomaren Masseneinheiten, Massendefekt und mittlere Bindungsenergie pro Nukleon

Nuklid	Neue Skala (Basis ^{12}C)	Alte physikalische Skala (Basis ^{16}O)	Massendefekt δM [ame]	BE/A = mittlere Bindungsenergie pro Nukleon [MeV]
^{1}H	1,0078252	1,00813		
n	1,0086652	1,00896		
e^{-} *)	0,0005486	0,0005503		
^{2}H	2,0141022	2,01471	0,0023884	1,11
^{3}H	3,0160497	3,01695	0,0091066	2,83
^{3}He	3,0160297	3,01693	0,0082859	2,57
^{4}He	4,0026031	4,00388	0,0303776	7,07
^{6}He	6,01889	6,02086	0,0314120	4,87
^{6}Li	6,015125	6,01690	0,0343458	5,33
^{7}Li	7,016004	7,01818	0,0421322	5,60
^{8}Li	8,022487	8,02502	0,0443146	5,16
^{9}Li	9,0268	9,05670	0,0474680	4,91
^{7}Be	7,016929	7,019150	0,0403660	5,37
^{8}Be	8,005308	8,007850	0,0606544	7,06
^{9}Be	9,012186	9,01506	0,0624420	6,24
^{10}Be	10,013534	10,01675	0,0697582	6,49
^{11}Be	11,02166	11,056698	0,0702986	5,95
^{8}B	8,024609	8,050122	0,0405102	4,46
^{10}B	10,012939	10,01618	0,0695141	6,77
^{11}B	11,009305	11,01284	0,0818133	6,92
^{12}B	12,014354	12,0182	0,0854308	6,63
^{13}B	13,017780	13,059163	0,0906702	6,49
^{10}C	10,01681	10,02084	0,0647828	6,03
^{11}C	11,011432	11,01499	0,0788452	6,86
^{12}C	12,000000	12,00386	0,0989436	7,68
^{13}C	13,003354	13,00756	0,1042547	7,47
^{14}C	14,0032419	14,00770	0,1130335	7,52

*) Zum Vergleich hier aufgeführt

Fortsetzung Tabelle 1.4.

Nuklid	Neue Skala (Basis ^{12}C)	Alte physikalische Skala (Basis ^{16}O)	Massendefekt δM [ame]	BE/A = mittlere Bindungsenergie pro Nukleon [MeV]
^{15}C	15,010599	15,015372	0,1143398	7,10
^{16}C	16,01470	16,06561	0,1189052	6,92
^{12}N	12,01864	12,0226	0,07939	6,15
^{13}N	13,005738	13,00991	0,101030	7,24
^{14}N	14,0030744	14,00754	0,1123598	7,47
^{15}N	15,000108	15,00489	0,1239915	7,70
^{16}N	16,006103	16,0107	0,12668	7,37
^{17}N	17,00845	17,01386	0,13298	7,28
^{14}O	14,008597	14,013050	0,105997	7,05
^{15}O	15,003070	15,0078	0,120187	7,46
^{16}O	15,9949149	16,000000	0,13698	7,97
^{17}O	16,999133	17,00450	0,1456753	7,75
^{18}O	17,9991600	18,0049	0,1500958	7,77
^{19}O	19,003578	19,00938	0,154344	7,57
^{20}O	20,00408	20,01043	0,162516	7,57

Die genauesten Massenbestimmungen sind mit einem Massenspektrographen oder einem Massenspektrometer möglich. Im Massenspektrographen wird eine photographische Platte zur Aufnahme des Massenspektrums benutzt. Im Massenspektrometer wird der Ionenstrom aufgefangen und gemessen. Die Meßgenauigkeit der heute bekannten Nuklidmassen bewegt sich zwischen 0,01 und 10 ppm.

Bei solchen Teilchen, die sich mit sehr hoher Geschwindigkeit bewegen, muß man zwischen der „bewegten Masse“ m und der „Ruhemasse“ m_0 unterscheiden. Aus der speziellen Relativitätstheorie folgt für ein Teilchen, das sich mit der Geschwindigkeit v bewegt:

$$m = \frac{m_0}{\sqrt{1 - \frac{v^2}{c^2}}}; \tag{1.9}$$

c ist die Lichtgeschwindigkeit.

Nach EINSTEIN besteht eine Äquivalenz zwischen Masse m und Energie E:

$$E = mc^2. \tag{1.10}$$

Dies folgt ebenfalls aus der speziellen Relativitätstheorie. Gleichung (1.10) ist von fundamentaler Bedeutung für die Kernwissenschaften. Sie gibt an, welche Energiebeträge durch Kernreaktionen (z. B. Kernspaltung, Kernfusion) — d. h. durch Umwandlung von Materie — in Freiheit gesetzt werden können. Da 1 ame $= 1{,}66044 \cdot 10^{-24}$ g und $c = 2{,}997925 \cdot 10^{10}$ cm s^{-1}, folgt 1 ame $= 1{,}49233 \cdot 10^{-3}$ erg. Verschiedene Energieeinheiten und ihre Umrechnungsfaktoren sind in Anhang II zusammengestellt. In den Kernwissenschaften rechnet man vorzugsweise mit der Energieeinheit 1 eV. Dies ist die Energie, die ein Elektron aufnimmt, wenn es eine Spannung von 1 Volt durchläuft; 1 eV $= 1{,}60210 \cdot 10^{-12}$ erg. Größere Energieeinheiten sind 1 keV $= 10^3$ eV und 1 MeV $= 10^6$ eV. Damit ist

$$1 \text{ ame} = 931{,}48 \pm 0{,}01 \text{ MeV} \approx 931{,}5 \text{ MeV}. \tag{1.11}$$

Entsprechend dem Proton-Neutron-Modell des Atomkerns ist die Nuklidmasse (M) gleich der Summe der Massen der Protonen (M_H) und der Neutronen (M_N) abzüglich eines kleinen Betrages δM, welcher der Bindungsenergie der Nukleonen im Kern entspricht,

$$M = ZM_H + NM_N - \delta M; \tag{1.12}$$

δM bezeichnet man als Massendefekt,

$$\delta M = \frac{BE}{c^2} = ZM_H + NM_N - M. \tag{1.13}$$

Dividiert man die Bindungsenergie *BE* durch die Massenzahl A, so erhält man die mittlere Bindungsenergie pro Nukleon

$$\frac{BE}{A} = c^2 \frac{ZM_H + NM_N - M}{A}. \tag{1.14}$$

Diese ist für die leichten Kerne in Tab. 1.4. angegeben und in Abb. (1–10) als Funktion der Massenzahl aufgezeichnet, für die mittelschweren und schweren Kerne in Abb. (1–11). Man erhält eine im wesentlichen stetig verlaufende Kurve. Bei den leichten Kernen findet man einige Unregelmäßigkeiten. So liegt die mittlere Bindungsenergie pro Nukleon für Deuterium (^{2}H) besonders niedrig und für $^4_2$He, $^{12}_6$C, $^{16}_8$O besonders hoch. Die letztgenannten Nuklide, insbeson-

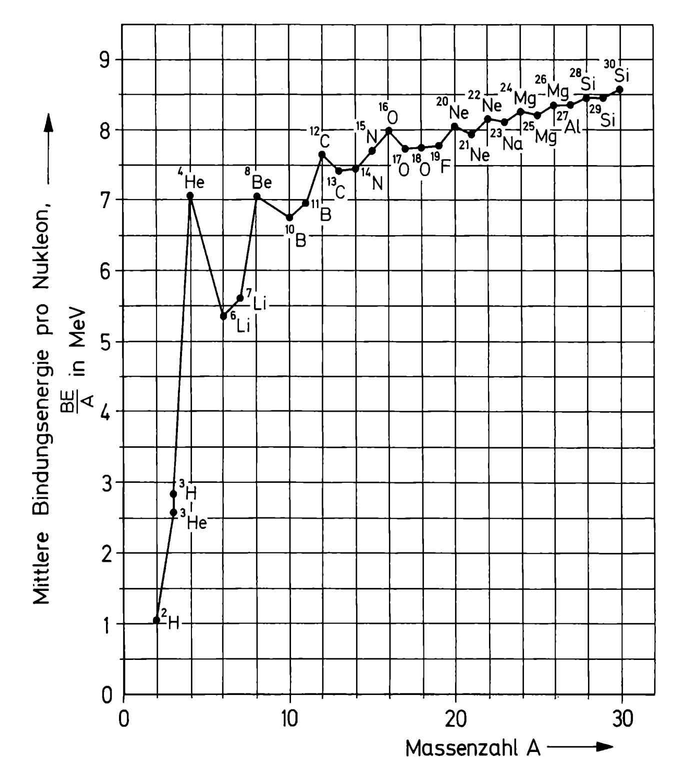


Abb. (1–10) Mittlere Bindungsenergie pro Nukleon für die leichteren Nuklide.

dere das $^4_2$He, zeichnen sich somit durch eine besonders große Stabilität aus. Bei den mittelschweren und schweren Kernen bewegt sich die mittlere Bindungsenergie pro Nukleon zwischen etwa 7,5 und 8,8 MeV. Sie steigt bis zur Massenzahl A = 60 an (Eisenmetalle) und fällt dann allmählich ab.

Die gerade-ungerade-Regeln, die in Abschnitt 1.4. behandelt wurden, treten sehr deutlich in Erscheinung, wenn die partielle Bindungsenergie δBE des „letzten" Protons oder Neutrons berechnet wird. Diese erhält man aus den folgenden Beziehungen:

$$\begin{aligned} \delta\, BE\,(\text{Proton}) &= ({}^{A-1}_{Z-1}\text{M} + \text{M}_\text{H} - {}^{A}_{Z}\text{M})\, c^2 \\ \delta\, BE\,(\text{Neutron}) &= ({}^{A-1}_{Z}\text{M} + \text{M}_\text{N} - {}^{A}_{Z}\text{M})\, c^2 \end{aligned} \tag{1.15}$$

Beim Übergang von einem u,g- bzw. g,u-Kern zu einem g,g-Kern ist die partielle Bindungsenergie des „letzten" Protons bzw. Neutrons stets verhältnismäßig hoch und beim Übergang von einem g,g-Kern zu einem u,g- bzw. g,u-Kern verhältnismäßig niedrig. In ähnlicher

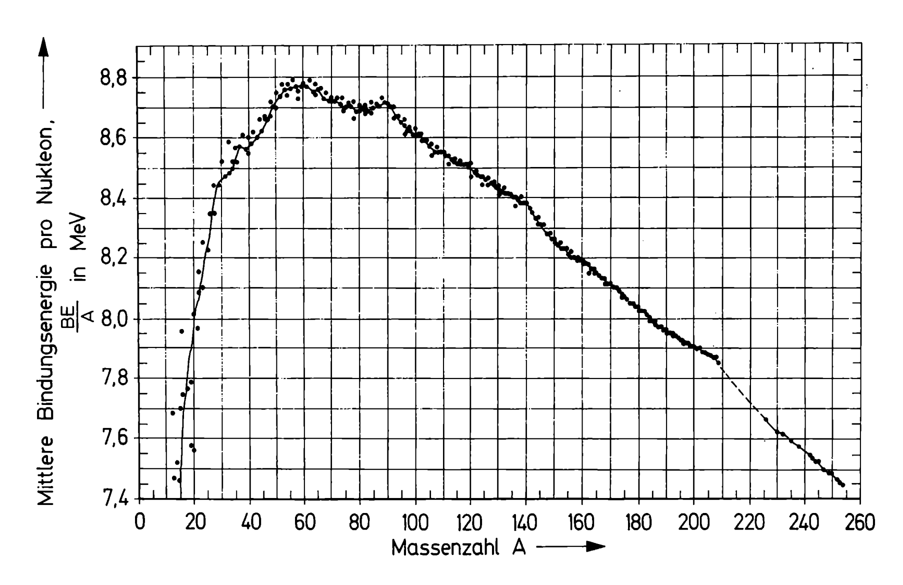


Abb. (1–11) Mittlere Bindungsenergie pro Nukleon für mittelschwere und schwere Nuklide.

Weise kann man auch die partielle Bindungsenergie eines $^4_2$He-Kerns (α-Teilchens) berechnen und so den Kern auf seine Stabilität hinsichtlich eines α-Zerfalls prüfen.

Als Maß für die Stabilität der Nuklide wurde früher auch der von ASTON eingeführte Packungsanteil $f = \frac{M - A}{A}$ verwendet. Die Kurve für den Packungsanteil f als Funktion der Massenzahl geht bei Verwendung der neuen Skala der Nuklidmassen bei ^{12}C durch Null, durchläuft etwa bei der Massenzahl 60 (Eisenmetalle) ein Minimum und steigt dann wieder schwach an.

Literatur zu Kapitel 1

1. Nuklidkarte. Hrsg. v. Bundesminister für Wissenschaftliche Forschung, Bad Godesberg. Verlag Gersbach u. Sohn, München.
2. I. KAPLAN: Nuclear Physics, 2. Aufl. Addison-Wesley Publ. Comp., Reading, Mass., 1964. Kap. 9 u. 12.
3. H. v. BUTTLAR: Einführung in die Grundlagen der Kernphysik. Akademische Verlagsgesellschaft, Frankfurt a. M. 1964. Kap. 3.

Übungen zu Kapitel 1

1. Mit Hilfe der Nuklidkarte suche man die Isotope der Ordnungszahl Z = 20, die Isotone mit der Neutronenzahl N = A − Z = 28 und die Isobaren mit der Massenzahl A = 96 heraus und schreibe jeweils die stabilen und die instabilen Nuklide auf.

2. Wieviele Isotone der Neutronenzahl N = 82 sind bekannt? Wieviele davon sind stabil? Wieviele von diesen stabilen Isotonen entstehen aus Uran-Spaltprodukten? Welche Umwandlungen erleiden diese Spaltprodukte? Wieviele Isotone mit N = 82 sind instabil und in welche stabilen Endprodukte zerfallen sie? Welche Arten von Kernumwandlungen finden dabei statt und wie ändern sich die Massenzahlen? Welches bekannte Isoton mit N = 82 hat die kleinste Halbwertzeit und welches sendet die energiereichste γ-Strahlung aus?

3. Welche stabilen Isotope der Elemente mit den Ordnungszahlen 60 und 62 sind bekannt? Man diskutiere die Möglichkeit für die Existenz eines stabilen Isotops des Elements mit der Ordnungszahl 61.

4. Aus der Nuklidkarte suche man die Isomeren direkt oberhalb und unterhalb der magischen Zahlen N = 28,50 und 82 heraus und vergleiche ihre Anzahl.

5. 1947 wurde unter den langlebigen radioaktiven Produkten der Uranspaltung ein neues Element entdeckt. Es bildet ein flüchtiges Oxid, dessen Dampfdichte 9,69mal so groß ist wie die des Sauerstoffs bei gleichem Druck und gleicher Temperatur, und enthält 36,2 Gewichtsprozent Sauerstoff. Wie groß ist das Molekulargewicht des Oxids? An welcher Stelle des Periodensystems ist das Element einzuordnen? Welchem Element wird es in seinen chemischen Eigenschaften ähnlich sein? Wie groß ist das Atomgewicht des neuen Elements ungefähr?

6. Mit Hilfe der Weizsäcker-Formel (1.2) und der in Abschn. 1.5. angegebenen Koeffizienten zeichne man die Bindungsenergie als Funktion der Ordnungszahl für die Massenzahl A = 126 auf, trage die Zerfallsarten ein und vergleiche die Ergebnisse mit der Nuklidkarte.

7. Mit Hilfe der Funktion $Z = f(A)$, die durch Differenzieren der Weizsäcker-Formel nach Z erhalten wird, bestimme man jeweils das stabilste Nuklid für die Massenzahlen A = 27, 127 bzw. 204 und vergleiche mit der Nuklidkarte.

8. Für präzise Massenbestimmungen mit einer Genauigkeit von 10^{-5} bis 10^{-6} verwendet man die sog. Dublettmethode. Dabei wird an Stelle der absoluten Massen die Differenz zwischen zwei nahezu gleichen Massen bestimmt. Der Bequemlichkeit halber benutzt man die Massen von H–1, H–2 und O–16 als Sekundärstandard. FolgendeDubletts wurden sorgfältig gemessen $({}^{12}C^{1}H_4)^+ - ({}^{16}O)^+ = 0{,}036378$ ame bei $m/e = 16$; $({}^{2}H_3)^+ - ({}^{12}C)^{++} = 0{,}042285$ ame bei $m/e = 6$; $({}^{1}H_2)^+ - ({}^{2}H)^+ = 0{,}0015478$ ame bei $m/e = 2$. Aus diesen Werten berechne man die Massen von H–1, H–2 und O–16 (Basis C–12 = 12,000000).

9. Um welchen Faktor ist die bewegte Masse größer als die Ruhemasse a) für ein Proton von 1 MeV, b) für ein Elektron von 1 MeV?

10. Wie groß ist die Bindungsenergie pro Nukleon a) für ein Deuteron, b) für ein α-Teilchen?

11. Wie groß ist die partielle Bindungsenergie des letzten Protons für C–12, Ne–20 und Ca–40 sowie die des letzten Neutrons für Cl–37? Man vergleiche die Ergebnisse mit der mittleren Bindungsenergie pro Nukleon.

12. Wie groß ist die partielle Bindungsenergie eines α-Teilchens für Ce–140?

2. Eigenschaften der Atomkerne

2.1. Kernradius

Nachdem THOMSON das Elektron entdeckt hatte (1897), entwickelte er die Vorstellung, daß die Atome kugelförmige Teilchen seien mit einer gleichmäßigen Verteilung der positiven Elektrizität und der negativen Elektronen (Thomsonsches Atommodell 1910). Dieses Modell stand jedoch nicht im Einklang mit der Streuung von α-Teilchen in Metallfolien, die von RUTHERFORD untersucht wurde. Insbesondere traten mehr gestreute α-Teilchen unter hohen Winkeln auf, als nach dem Thomsonschen Atommodell zu erwarten war. Auf Grund dieser Versuche gelang es RUTHERFORD 1911 zu zeigen, daß die positive Ladung der Atome in einem sehr kleinen Bereich, dem Atomkern, konzentriert sein mußte (Rutherfordsches Atommodell). Durch die über das gesamte Atom verteilten Elektronen wurde die Streuung der α-Teilchen nicht beeinflußt. Die Rutherfordsche Streuformel erlaubte die quantitative Deutung der Versuchsergebnisse. Sie lautet

$$n(\vartheta) = n_0 \frac{Nd}{16\,a^2} \left(\frac{2\,Ze^2}{\frac{1}{2} M_\alpha v_\alpha^2} \right)^2 \frac{1}{\sin^4(\vartheta/2)}. \tag{2.1}$$

$n(\vartheta)$ ist die Zahl der unter dem Winkel ϑ gestreuten α-Teilchen, die im Abstand a von der Streufolie auf die Flächeneinheit des Detektors auftrifft. n_0 ist die Zahl der einfallenden α-Teilchen, d die Dicke der streuenden Substanz, N die Zahl der Kerne pro Volumeneinheit der streuenden Substanz und M_α bzw. v_α die Masse bzw. Anfangsgeschwindigkeit der α-Teilchen.

$\frac{Ze \cdot 2e}{r^2} = \frac{2\,Ze^2}{r^2}$ ist die Coulombsche Wechselwirkung zwischen einem α-Teilchen (Ladung $2e$) und einem Kern mit der Kernladung Z in einem bestimmten Abstand r. Ein α-Teilchen beschreibt im Kraftfeld

eines Kerns die Bahn einer Hyperbel. Die Rutherfordsche Streuformel wurde 1913 Punkt für Punkt von GEIGER und MARSDEN geprüft: Die Abhängigkeit vom Streuwinkel ϑ, von der Dicke d der streuenden Substanz, von der Energie bzw. Geschwindigkeit v_α der α-Teilchen und von der Kernladung Ze. In allen Fällen wurde Übereinstimmung erzielt.

Während bei der Ableitung der Rutherfordschen Streuformel der Atomkern zunächst als punktförmig angenommen wurde, erhob sich nun die Frage nach dem tatsächlichen Radius des Kerns. Um Aussagen darüber zu gewinnen, prüfte man unter Verwendung von energiereichen α-Teilchen, bis zu welchem Abstand r vom Kern das $1/r^2$-Gesetz für die Coulombsche Abstoßung gültig war. Beim Aluminium zeigte sich, daß unterhalb $r \approx 6 \cdot 10^{-13}$ cm die Abstoßung kleiner war, als man auf Grund der Coulombschen Wechselwirkung erwartete. Durch diese Versuche gelang es erstmals, den Bereich der Kernkräfte festzulegen und damit auch den Kernradius. Eine große Zahl von weiteren Streuversuchen erlaubte die Aufstellung der folgenden Beziehung zwischen dem Kernradius r_K und der Massenzahl A:

$$r_K = r_0 A^{1/3}. \tag{2.2}$$

Aus den Streuversuchen mit α-Teilchen ergab sich $r_0 = 1{,}4 \cdot 10^{-13}$ cm. Genauere Rechnungen führten zu dem Wert $r_0 = (1{,}28 \pm 0{,}05) \cdot 10^{-13}$ cm, während aus Versuchen mit schnellen Elektronen und mit μ-Mesonen $r_0 = (1{,}2 \pm 0{,}1) \cdot 10^{-13}$ cm resultierte. Die Größe 10^{-13} cm wurde als neue Längeneinheit eingeführt: 10^{-13} cm $= 1$ Fermi (F) oder 1 Femtometer (fm).

Die unterschiedlichen Ergebnisse beruhen darauf, daß z. B. die Streuung der Elektronen von der Ladungsverteilung im Kern abhängt, nicht aber von der Verteilung der Kernkräfte, während für die Wechselwirkung des Kerns mit Neutronen die Kernkräfte verantwortlich sind. Um die Ladungsverteilung im Kern näher zu untersuchen, muß man sehr energiereiche Elektronen verwenden, deren de Broglie-Wellenlänge kleiner ist als der Kerndurchmesser (Energie > 100 MeV). Im Innern des Kerns ist die Ladungsverteilung konstant und fällt dann innerhalb eines verhältnismäßig großen Bereiches kontinuierlich ab. Die Ladungsverteilung wird charakterisiert durch den Halbwertradius c und die Hautdicke d (vgl. Abb.(2–1)). Für alle Kerne mit Kernladungszahlen $Z > 10$ gilt $c = 1{,}07 \cdot 10^{-13} \cdot A^{1/3}$ cm und $d \approx 2{,}4 \cdot 10^{-13}$ cm. Die Verteilung der Neutronen im Kern ist experimentell weniger

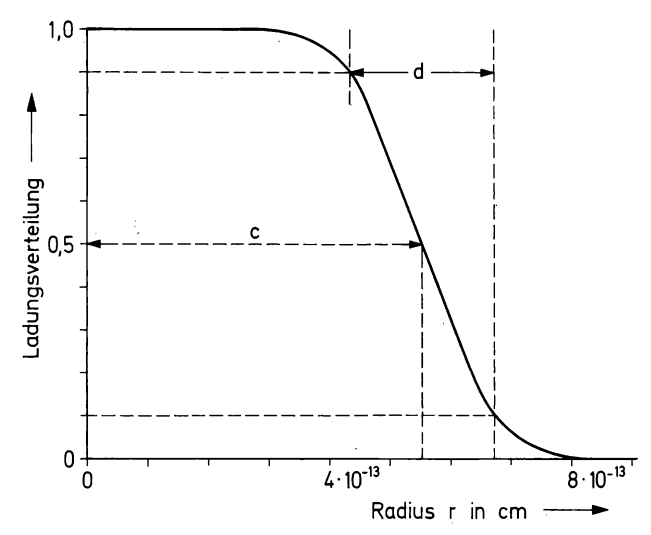


Abb. (2–1) Ladungsverteilung in einem Kern (c = Halbwertradius, d = Hautdicke).

gut zugänglich als die Verteilung der Protonen (Ladungsverteilung). Man darf aber annehmen, daß die Neutronen die gleiche Verteilungskurve zeigen wie die Protonen; dann ist aber auch die Massenverteilung im Kern gleich der Ladungsverteilung (vgl. Abb.(2–1)).

Die Reichweite der Kernkräfte kann durch eine Potentialkurve wiedergegeben werden (Abb.(2–2)). Verständlicherweise ist der durch die Reichweite der Kernkräfte bestimmte Wert für den Kernradius etwas größer als der aus der Ladungs- bzw. Massenverteilung erhaltene Wert.

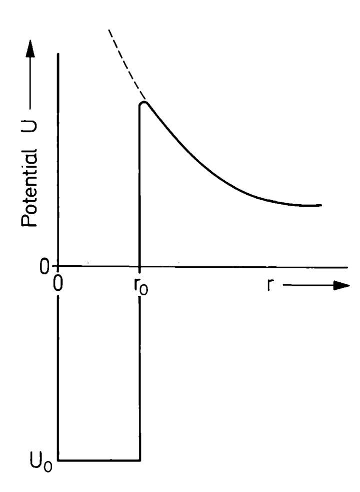


Abb. (2–2) Potentialkurve für die Reichweite der Kernkräfte (Potentialtopf).

Wichtig ist der aus diesen Ergebnissen resultierende Befund, daß die Dichte der Atomkerne praktisch konstant ist, d. h. unabhängig von der Massenzahl A. Aus der Beziehung zwischen Radius und Massenzahl berechnet man für die Dichte

$$\rho_{\mathrm{Kern}} \approx \frac{\mathrm{A}}{\frac{4}{3}\pi r_{\mathrm{K}}^{3}\mathrm{N_L}} = \frac{1}{\frac{4}{3}\pi r_{\mathrm{o}}^{3}\mathrm{N_L}} \approx 2 \cdot 10^{14}\,\mathrm{g/cm^3}. \tag{2.3}$$

($\mathrm{N_L}$ = Loschmidtsche Zahl)

2.2. Kernkräfte

Aus den Rutherfordschen Streuversuchen folgt, daß die Kernkräfte nur eine sehr kurze Reichweite besitzen und mit wachsender Entfernung vom Kern sehr rasch abfallen. Wenn man den Potentialverlauf für die Annäherung von zwei Nukleonen aufzeichnet (Abb. (2–3)), so erhält man ein ähnliches Bild wie für die chemische Bindung zwischen zwei Atomen (vgl. Morse-Funktion); jedoch sind die Abstände um etwa 5 Größenordnungen kleiner und die Energien um mehr als 6 Grö-

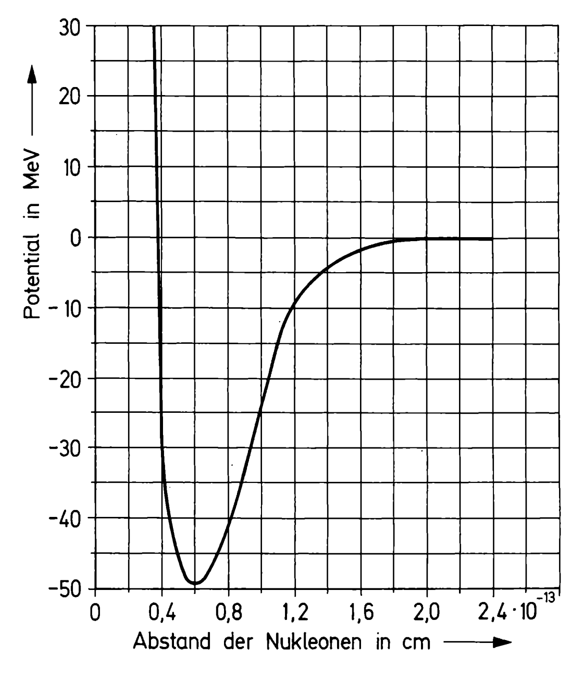


Abb. (2–3) Potentialverlauf bei der Annäherung von zwei Nukleonen.

ßenordnungen höher. Erst bei einem Abstand der Nukleonen, der kleiner ist als etwa $2{,}4 \cdot 10^{-13}$ cm, werden die Kernkräfte wirksam. Dann findet eine Anziehung statt, wobei das Potential sehr hohe negative Werte annimmt. Bei kleineren Abständen (etwa $0{,}4 \cdot 10^{-13}$ cm) tritt eine sehr starke Abstoßung der Nukleonen ein; das Potential erreicht sehr hohe positive Werte.

Die Bindungsenergie pro Nukleon ist — von kleineren Schwankungen abgesehen — unabhängig von der Massenzahl, d. h. der Zahl der Nukleonen (vgl. Abb. (1–11)). Das bedeutet, daß jedes Nukleon nur mit einer beschränkten Anzahl von anderen Nukleonen in Wechselwirkung tritt. Wenn alle Nukleonen miteinander in Wechselwirkung stünden — ähnlich wie geladene Teilchen der Coulombschen Wechselwirkung unterliegen —, würde die Bindungsenergie pro Nukleon mit der Zahl der Nukleonen ansteigen. Die Bindungsenergie der Nukleonen im Kern läßt somit eine gewisse Analogie zur chemischen Bindung zwischen Atomen erkennen. Auch im Falle der chemischen Bindung tritt immer nur eine beschränkte Zahl von Nachbaratomen miteinander in Wechselwirkung, sei es durch kovalente Bindung oder durch van der Waalssche Kräfte. Man spricht deshalb von einer Absättigung der chemischen Bindungskräfte und in Analogie dazu auch von einer Absättigung der Kernkräfte. Als Modell eines Atomkerns kann ein Flüssigkeitströpfchen dienen, dessen Moleküle durch van der Waalssche Kräfte zusammengehalten werden (Tröpfchen-Modell des Atomkerns).

Die Coulombsche Abstoßungsenergie E_c zwischen zwei Protonen ist verhältnismäßig gering; sie beträgt (Elementarladung e, Abstand $r \approx 3 \cdot 10^{-13}$cm) $E_c = \frac{e^2}{r} \approx 0{,}5$ MeV und ist damit klein gegenüber der Bindungsenergie pro Nukleon ($\approx$ 8 MeV). Für eine größere Anzahl von Protonen Z steigt die gesamte Coulombsche Abstoßung aber an nach der Gleichung

$$E_c = \frac{3}{5} Z(Z-1) \frac{e^2}{r_K}, \tag{2.4}$$

(Kernradius r_K), während die Kernkräfte eine Absättigung zeigen. Die Coulombsche Abstoßung bewirkt somit, daß schwere Kerne nicht stabil sind.

Zur Erklärung der Absättigung der Kernkräfte kann man ähnliche Überlegungen anstellen wie im Falle der chemischen Bindung. Als

einfaches Beispiel dient das Wasserstoffmolekülion H_2^+, das aus 2 Protonen und einem Elektron besteht. Die rechnerische Behandlung der chemischen Bindung zwischen den beiden Protonen führt zu einer Beziehung, in der normale Kräfte und Austauschkräfte auftreten. Diese Austauschkräfte beruhen darauf, daß das Elektron sich entweder bei dem einen oder dem anderen Proton aufhalten, d. h. seine Position austauschen kann. Austauschkräfte können anziehenden oder abstoßenden Charakter haben, je nach dem Zustand, in dem sich die Teilchen befinden. Zur Deutung und mathematischen Behandlung der Kernkräfte nimmt man an, daß auch zwischen Nukleonen Austauschkräfte wirksam sind. Unmittelbar nach der Entdeckung des Neutrons (1932 durch CHADWICK) nahm HEISENBERG bereits an, daß die elektrische Ladung zwischen einem Proton und einem Neutron hin- und herspringen kann (ähnlich wie das Elektron zwischen zwei Protonen im Wasserstoffmolekülion). Dieses Bild versagte jedoch bei der quantitativen Behandlung; es ergaben sich viel zu kleine Werte für die Kernkräfte. Deshalb sagte YUKAWA 1935 die Existenz eines neuen Teilchens voraus, das er Meson nannte, weil seine Masse zwischen der Ruhemasse eines Elektrons und eines Nukleons liegen sollte. Auf diesem Teilchen baute er die Mesonentheorie der Kernkräfte auf. Später wurden verschiedene Arten von Mesonen entdeckt. Die quantitative Behandlung der Kernkräfte ist jedoch noch nicht gelungen. Offenbar sind die Kenntnisse über ihre Natur noch unzureichend.

Über die Kräfte zwischen jeweils zwei Nukleonen können aus der Nuklidkarte einige Aussagen gewonnen werden. Das Vorhandensein einer etwa gleichen Anzahl von Protonen und Neutronen in den stabilen leichten Kernen legt die Vermutung nahe, daß zwischen einem Neutron und einem Proton eine besonders starke Anziehung besteht (n-p-Kräfte). Dafür spricht auch die Existenz des Deuterons, während z. B. ein Diproton nicht beständig ist. Geht man davon aus, daß auch jeweils zwischen zwei Protonen und zwei Neutronen eine Anziehung besteht (p-p- bzw. n-n-Kräfte), so müssen diese Anziehungskräfte etwa gleich groß sein (abgesehen von der Coulombschen Abstoßung zwischen zwei Protonen); sie können aber nicht größer sein als die Anziehungskraft zwischen einem Proton und einem Neutron; denn sonst würden die stabilen leichteren Kerne einen Überschuß an Protonen oder Neutronen enthalten. Der Neutronenüberschuß bei den schwereren Kernen ist zur Kompensation der etwa mit dem Quadrat der Ordnungszahl ansteigenden Coulombschen Abstoßung zwischen den Protonen erforderlich. Da jedes Nukleon nur mit einer begrenzten Zahl

von anderen Nukleonen in Wechselwirkung treten kann, muß bei schwereren Kernen in steigendem Maße eine Wechselwirkung zwischen Neutronen (n-n-Kräfte) in Betracht gezogen werden. Auf Grund dieser Überlegungen bestehen zwei Möglichkeiten:

a) Ladungsunabhängigkeit der Kernkräfte; d. h.:
n-p-Kräfte $\approx$ n-n-Kräfte $\approx$ p-p-Kräfte

b) Ladungssymmetrie der Kernkräfte; d. h.:
n-p-Kräfte $\gg$ n-n-Kräfte $\approx$ p-p-Kräfte

Zur Prüfung dieser beiden Möglichkeiten können die Energiezustände der Kerne herangezogen werden. Die nähere Untersuchung der Energiezustände isobarer Kerne spricht für die Ladungsunabhängigkeit der Kernkräfte. Dies führt zu der Vorstellung, daß das Proton und das Neutron als zwei verschiedene Zustände ein und desselben Teilchens aufgefaßt werden können, wobei die Ladung als Veränderliche anzusehen ist. Der jeweilige Zustand des Nukleons wird durch eine Quantenzahl, den sog. Isospin τ, gekennzeichnet:

$\tau = +\frac{1}{2}$ für ein Neutron, $\tau = -\frac{1}{2}$ für ein Proton. Die Ladung eines Nukleons ist dann $\frac{1}{2} - \tau$.

Die Quantenzahl T für den Isospin eines Kerns, der aus Z Protonen und N Neutronen besteht, ergibt sich zu

$$T = \frac{1}{2}(\mathrm{N} - \mathrm{Z}). \tag{2.5}$$

Die bisherigen Ergebnisse sprechen dafür, daß auch hinsichtlich des Isospins ein Erhaltungssatz gilt, ähnlich wie für den Drehimpuls.

2.3. Elementarteilchen

Noch vor einigen Jahrzehnten glaubte man, daß die Elemente und damit auch die gesamte Materie aus einer verhältnismäßig kleinen Anzahl von verschiedenen Elementarteilchen aufgebaut sei. Elektronen sind schon seit 1858 in Form von Kathodenstrahlen bekannt; der Name „Elektron“ wurde 1881 eingeführt. Protonen sind ebenfalls schon verhältnismäßig lange bekannt, zunächst in Form von Kanalstrahlen (seit 1886); sie wurden 1914 als Bestandteile der Wasserstoffatome erkannt. Die Entdeckung des Neutrons im Jahre 1932 durch

CHADWICK hatte eine stürmische Entwicklung der Kernwissenschaften zur Folge. Im gleichen Jahre (1932) beobachtete ANDERSON Teilchen, die sich wie Elektronen verhielten, aber im Magnetfeld in entgegengesetzter Richtung abgelenkt wurden; sie wurden Positronen (positive Elektronen) genannt. In Analogie dazu bezeichnet man das Elektron auch als Negatron.

Bald nachdem YUKAWA zur Deutung der Kernkräfte seine Theorie von der Existenz mittelschwerer Teilchen (Mesonen) aufgestellt hatte (1935), wurden verschiedene Arten von derartigen Teilchen entdeckt. Die Mesonen sind alle sehr instabil; ihre Halbwertzeit beträgt maximal etwa 1 μs. Sie spielen deshalb für chemische Untersuchungen nur eine untergeordnete Rolle. Das gleiche gilt für die sog. Hyperonen, deren Masse größer ist als die Masse der Nukleonen. Sie sind im allgemeinen noch kurzlebiger als die Mesonen (Halbwertzeiten von der Größenordnung 10^{-10} s). Mesonen und Hyperonen treten bei Reaktionen von hochenergetischen Teilchen in Erscheinung.

Nach der Neutrinohypothese von FERMI (1934) sollte bei der β-Umwandlung von radioaktiven Nukliden ein sehr leichtes ungeladenes Teilchen auftreten. Die Existenz solcher Teilchen wurde auch von PAULI sowie in der Theorie von YUKAWA gefordert. Das Neutrino konnte aber erst vor einigen Jahren mit einem großen experimentellen Aufwand nachgewiesen werden. Seine Wechselwirkung mit Materie ist außerordentlich gering.

Interessant ist die Tatsache, daß man von fast allen Elementarteilchen sog. Antiteilchen gefunden hat, welche die gleiche Masse, aber entgegengesetzte Richtung des Drehimpulses (Spin) und des magnetischen Momentes sowie gegebenenfalls auch entgegengesetzte Ladung besitzen. So ist das Positron das Antiteilchen des Elektrons. Das Antiproton (negative Ladung, magnetisches Moment negativ, d. h. antiparallel zum Spin) ist das Antiteilchen des Protons (magnetisches Moment positiv, d. h. parallel zum Spin), und das Antineutron (magnetisches Moment positiv, d. h. parallel zum Spin) ist das Antiteilchen des Neutrons (magnetisches Moment negativ, d. h. antiparallel zum Spin). Teilchen und Antiteilchen können nicht nebeneinander existieren. Sobald sie zusammentreffen, findet eine sog. Zerstrahlung statt; d. h. die Teilchen verschwinden, und an ihrer Stelle tritt eine Vernichtungsstrahlung auf. Aus einem Elektron (Negatron) und einem Positron bildet sich intermediär ein Positroniumatom, und zwar entweder im Singulettzustand (antiparalleler Spin, Drehimpuls Null, Halbwertzeit etwa 10^{-8} s) oder im Triplettzustand (paralleler Spin,

Tabelle 2.1.
Übersicht über die zur Zeit bekannten Elementarteilchen

Teilchengruppe	Elementarteilchen	Symbol	elektrische Ladung	Ruhemasse	Zerfall	mittlere Lebensdauer
Leptonen	Lichtquant	γ	0	$< 10^{-17}\, m_e$	—	—
	Neutrino	ν	0	$< \frac{1}{500}\, m_e$	—	—
	Antineutrino	$\bar{\nu}$	0		—	—
Elektronen	Elektron	e^-, β^-	$-e$	$1\, m_e$	—	—
	Positron	e^+, β^+	$+e$		—	—
Mesonen: Leichte Mesonen (L-Mesonen)	Myonen	μ^+	$+e$	$207\, m_e$	$e^+ + \nu + \bar{\nu}$	$2{,}22 \cdot 10^{-6}$ s
		μ^-	$-e$		$e^- + \nu + \bar{\nu}$	
	Pionen	π^+	$+e$	$273\, m_e$	$\mu^+ + \nu$	$2{,}55 \cdot 10^{-8}$ s
		π^-	$-e$		$\mu^- + \bar{\nu}$	
		π^0	0	$265\, m_e$	2γ	$2 \cdot 10^{-16}$ s
Schwere Mesonen (K-Mesonen)	K-Teilchen, Kaonen	K^+	$+e$	$966\, m_e$	sehr mannigfaltig	$1{,}22 \cdot 10^{-8}$ s
		K^-	$-e$			
		K_1^0	0	$965\, m_e$		$1{,}0 \cdot 10^{-10}$ s
		K_2^0	0			$6{,}1 \cdot 10^{-8}$ s

Baryonen / Nukleonen	Proton	p^+	$+e$	$1\,836\ m_e$	—	—
	Antiproton	p^-	$-e$		—	—
	Neutron	n	0	$1\,839\ m_e$	$p^+ + e^- + \overline{\nu}$	$1{,}013 \cdot 10^3$ s
	Antineutron	$\overline{n}$	0		$p^- + e^+ + \nu$	
Hyperonen	Lambdateilchen	Λ^0	0	$2\,181\ m_e$	$p^+ + \pi^-$ (65%) $n + \pi^0$ (35%)	$2{,}51 \cdot 10^{-10}$ s
		$\overline{\Lambda^0}$	0	$2\,182\ m_e$	$\pi^+ + p^-$	
	Sigmateilchen	Σ^+	$+e$	$2\,327\ m_e$	$p^+ + \pi^0$ ($\approx$ 50%) $n + \pi^+$ ($\approx$ 50%)	$0{,}81 \cdot 10^{-10}$ s
		Σ^0	0		$\Lambda^0 + \gamma$	$< 10^{-11}$ s
		Σ^-	$-e$	$2\,342\ m_e$	$n + \pi^-$	$1{,}61 \cdot 10^{-10}$ s
	Xi-Teilchen	Ξ	$-e$	$2\,583\ m_e$	$\Lambda^0 + \pi^-$	$1{,}3 \cdot 10^{-10}$ s
		$\overline{\Xi^+}$	$+e$	$2\,589\ m_e$	$\overline{\Lambda} + \pi^+$	$0{,}35 \cdot 10^{-10}$ s
		$\overline{\Xi^0}$	0	$2\,566\ m_e$	$\overline{\Lambda} + \pi^0$	$1{,}5 \cdot 10^{-10}$ s
		Ξ^0	0	$2\,566\ m_e$	$\Lambda^0 + \pi^0$	

Drehimpuls $h/2\pi$, Halbwertzeit etwa 10^{-5} s). Wegen der Impulserhaltung entstehen aus dem Singulettzustand zwei γ-Quanten, aus dem Triplettzustand drei. Die Gesamtenergie E der beiden γ-Quanten, die aus dem Singulettzustand des Positroniumatoms hervorgehen, ist äquivalent der Summe der Massen des Elektrons und des Positrons:

$$E = 2mc^2 \tag{2.6}$$

(m=Masse des Teilchens bzw. Antiteilchens). Durch Einsetzen der Zahlenwerte erhält man

$$\begin{aligned} E = 2h\nu &= \frac{2 \cdot 931{,}5}{1836}\ \text{MeV} = 1{,}02\ \text{MeV} \\ h\nu &= 0{,}51\ \text{MeV}. \end{aligned} \tag{2.7}$$

Als Vernichtungsstrahlung von Nukleonen treten mehrere Mesonen auf. Ob ein beliebiges System aus Materie oder Antimaterie besteht, hängt davon ab, welche Teilchen im Überschuß vorhanden sind. So sind grundsätzlich auch Sterne denkbar, die aus Antimaterie bestehen.

Tab. 2.1. gibt eine Übersicht über die zur Zeit bekannten Elementarteilchen. Man teilt sie ein in Leptonen (leichte Teilchen), Mesonen (mittelschwere Teilchen) und Baryonen (schwere Teilchen). Die Photonen (Lichtquanten bzw. γ-Quanten) kann man auf Grund der Dualität zwischen Wellen und Teilchen ebenfalls in diese Tabelle aufnehmen. Die Energie E der Photonen ist proportional ihrer Frequenz ν bzw. umgekehrt proportional ihrer Wellenlänge:

$$E = h\nu = \frac{hc}{\lambda} \tag{2.8}$$

(h = Plancksches Wirkungsquantum = $6{,}6256 \cdot 10^{-27}$ erg s = $4{,}1356 \cdot 10^{-21}$ MeV s). Die Photonen können im allgemeinen zu den leichten Teilchen gezählt werden. Ihre Masse steigt direkt proportional mit ihrer Energie an:

$$m = \frac{E}{c^2} = \frac{h\nu}{c^2} \tag{2.9}$$

(c=Lichtgeschwindigkeit). Ihre Ruhemasse ist Null.

2.4. Drehimpuls

Bei genauer Betrachtung der Atomspektren der Elemente fand man eine Aufspaltung der Spektrallinien, die als Hyperfeinstruktur bezeichnet wird. Diese Hyperfeinstruktur kann zum Teil darauf beruhen, daß die Elemente aus verschiedenen Isotopen bestehen. Da sie aber auch bei Reinelementen gefunden wird, folgt, daß die Kerne einen Drehimpuls besitzen müssen. Der Drehimpuls bedingt ein magnetisches Moment des Kerns, das mit dem magnetischen Moment der Elektronen in Wechselwirkung tritt. Je nach der Orientierung des Kerndrehimpulses zu dem Gesamtdrehimpuls der Elektronen ergeben sich kleine Unterschiede in der Energie der Atome. Daraus resultiert die Hyperfeinstruktur der Spektrallinien, die beim Anlegen eines äußeren Magnetfeldes beobachtet wird.

Der Kerndrehimpuls kann aus der Multiplizität und dem Abstand der Spektrallinien in den sog. Hypermultipletts berechnet werden. Neuere Untersuchungsmethoden sind: Radiofrequenz-Spektroskopie, Mikrowellen-Spektroskopie und Ablenkung von Molekularstrahlen im magnetischen Feld.

Ebenso wie der Drehimpuls der Elektronen*) hat auch der Kerndrehimpuls quantenmechanische Eigenschaften und wird ebenfalls in Einheiten von $\frac{h}{2\pi}$ gemessen. Der Kerndrehimpuls $\vec{I}$ ist ein Vektor vom Betrag $\sqrt{I(I+1)}\,\frac{h}{2\pi}$; I ist die Quantenzahl für den Kerndrehimpuls und wird meist als „Kernspin“ bezeichnet. Für Kerne mit gerader Massenzahl A ist $I = 0, 1,2, 3 \ldots$, für Kerne mit ungerader Massenzahl $I = \frac{1}{2}, \frac{3}{2}, \frac{5}{2} \ldots$ Alle g, g-Kerne haben im Grundzustand den Kernspin $I = 0$. u, u-Kerne besitzen einen ganzzahligen Kernspin, der im allgemeinen von Null verschieden ist. g, u- und u, g-Kerne haben einen halbzahligen Kernspin mit Werten zwischen $\frac{1}{2}$ und $\frac{9}{2}$.

Zur Erklärung des Kerndrehimpulses nimmt man an, daß die Nukleonen (Protonen und Neutronen) ähnlich wie die Elektronen um eine Achse rotieren, die durch ihren Schwerpunkt geht, und sich außer-

*) Der Drehimpuls (Spin) eines Elektrons beträgt $\frac{1}{2}\frac{h}{2\pi} = \frac{1}{2}\hbar$, ebenso der Drehimpuls eines Protons oder eines Neutrons.

dem innerhalb des Kerns auf bestimmten Bahnen bewegen. Infolge ihrer Rotation besitzen alle Nukleonen einen Eigendrehimpuls (Spin); dies ist ein Vektor vom Betrag $\sqrt{\frac{1}{2}\left(\frac{1}{2}+1\right)}\,\frac{h}{2\pi}$. Unter dem Einfluß eines äußeren Magnetfeldes führt das Nukleon eine Präzessionsbewegung aus, deren Achse mit der Richtung des Magnetfeldes übereinstimmt (vgl. Abb. (2–4)). Dabei tritt eine sog. Richtungsquantelung

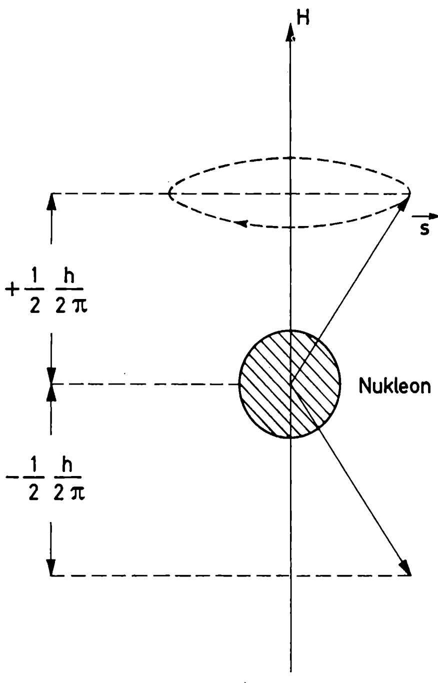


Abb. (2–4) Richtungsquantelung des Spins $\vec{s}$ eines Nukleons in einem äußeren Magnetfeld H.

auf derart, daß die Komponente des Spinvektors in Richtung des Magnetfeldes entweder $+\frac{1}{2}\frac{h}{2\pi}$ oder $-\frac{1}{2}\frac{h}{2\pi}$ beträgt. Die Komponente des Spinvektors in Feldrichtung ist meßbar, während man den Betrag des Spins aus theoretischen Überlegungen herleiten muß. Infolge ihrer Bewegung auf bestimmten Bahnen innerhalb des Kerns besitzen die Nukleonen einen Bahndrehimpuls. Dies ist ein Vektor vom Betrag $\sqrt{l(l+1)}\,\frac{h}{2\pi}$ (Quantenzahl l). Der Eigendrehimpuls $\vec{s}$ und der Bahndrehimpuls $\vec{l}$ setzen sich vektoriell zusammen zum Gesamtdrehim-

puls $\vec{i}$ eines Nukleons:

$$\vec{i} = \vec{l} + \vec{s}. \tag{2.10}$$

Der Betrag des Gesamtdrehimpulses ist $\sqrt{i\left(i+\frac{1}{2}\right)}\,\frac{h}{2\pi}$. Die Quantenzahl i kann aus den Quantenzahlen l und s berechnet werden $\left(i = \frac{1}{2}, \frac{3}{2}, \frac{5}{2}, \ldots\right)$. Die Komponenten von $\vec{i}$ in einer vorgegebenen Richtung sind ungerade halbzahlige Vielfache von $\frac{h}{2\pi}$.

Ein einzelnes Nukleon besitzt nur einen Eigendrehimpuls (Spin) vom Betrag $\frac{1}{2}\frac{h}{2\pi}$; in diesem Fall ist die Bezeichnung Kernspin korrekt. Der Begriff Kernspin hat sich aber auch eingebürgert zur Kennzeichnung des Gesamtdrehimpulses $\vec{I}$ eines aus mehreren Nukleonen bestehenden Kerns bzw. der Quantenzahl I dieses Gesamtdrehimpulses. Der Gesamtdrehimpuls $\vec{I}$ eines Kernes setzt sich vektoriell aus dem Gesamtbahndrehimpuls $\vec{L}$ und dem Gesamtspin $\vec{S}$ zusammen:

$$\vec{I} = \vec{L} + \vec{S} = \sum \vec{l_i} + \sum \vec{s_i}. \tag{2.11}$$

Der Gesamtbahndrehimpuls $\vec{L}$ ist die Vektorsumme der Bahndrehimpulse $\vec{l}$ und der Gesamtspin $\vec{S}$ die Vektorsumme der Eigendrehimpulse $\vec{s}$ der einzelnen Nukleonen. $\vec{L}$ ist ein Vektor vom Betrag $\sqrt{L(L+1)}\,\frac{h}{2\pi}$ (Quantenzahl $L = 1, 2, 3, \ldots$); seine Komponenten in Feldrichtung sind ganzzahlige Vielfache von $\frac{h}{2\pi}$. $\vec{S}$ ist ein Vektor vom Betrag $\sqrt{S(S+1)}\,\frac{h}{2\pi}$ (Quantenzahl $S = \frac{1}{2}, \frac{3}{2}, \frac{5}{2}, \ldots$); seine Komponenten in Feldrichtung sind ganzzahlige Vielfache von $\frac{1}{2}\frac{h}{2\pi}$. Die Quantenzahl S für den Gesamtspin ist im Falle einer geraden Massenzahl A eine ganze Zahl und im Falle einer ungeraden Massenzahl eine ungerade halbe Zahl. Aus der Tatsache, daß alle g, g-Kerne im Grundzustand den Kernspin $I = 0$ besitzen, folgt, daß sowohl die Protonen als auch die Neutronen sich hinsichtlich ihres Drehimpulses paarweise absättigen können.

Für den Gesamtdrehimpuls (Kernspin) $\vec{I}$ gilt ein Erhaltungssatz: Bei allen Veränderungen innerhalb eines Systems (z. B. Kernreaktionen) bleibt der Gesamtdrehimpuls erhalten. Wendet man diesen Erhaltungssatz auf die Proton-Elektron-Hypothese vom Aufbau der Atomkerne an, so ergeben sich bei einer Reihe von Nukliden (z. B. den u,u-Kernen ^2_1H, ^6_3Li, $^{10}_5B$, $^{14}_7N$) Widersprüche, woraus folgt, daß diese Hypothese nicht richtig sein kann.

2.5. Magnetisches Dipolmoment

Die Rotation eines geladenen Teilchens bewirkt ein magnetisches Moment (Dipolmoment). Das magnetische Moment eines Elektrons beträgt nach der Theorie

$$\mu_B = \frac{eh}{4\pi m_e c} = 0{,}92732 \cdot 10^{-20} \text{ erg/Gauß} \qquad (2.12)$$

(e ist die elektrische Elementarladung, m_e die Masse des Elektrons und c die Lichtgeschwindigkeit). μ_B wird als Bohrsches Magneton bezeichnet. Der experimentell bestimmte Wert für das magnetische Moment eines Elektrons stimmt sehr gut mit dem berechneten Wert für μ_B überein.

Das magnetische Moment der Atomkerne ist viel geringer. Als Einheit dient 1 Kernmagneton:

$$\mu_K = \frac{eh}{4\pi m_p c} = 0{,}50505 \cdot 10^{-23} \text{ erg/Gauß} \qquad (2.13)$$

(m_p Masse des Protons). Ein Kernmagneton ist somit um den Faktor $m_e/m_p = 1/1836$ kleiner als ein Bohrsches Magneton. Die Werte für das magnetische Moment der Atomkerne bewegen sich zwischen 0 und 5 Kernmagnetonen. Das magnetische Moment des Protons stimmt allerdings nicht mit dem berechneten Wert überein; es beträgt $\mu_p = +2{,}7926\,\mu_K$ (das positive Vorzeichen zeigt an, daß Spin und magnetisches Moment parallel gerichtet sind). Die mangelnde Übereinstimmung führt man darauf zurück, daß die Protonen eine innere Struktur besitzen, die noch unbekannt ist. Überraschenderweise besitzen auch die ungeladenen Neutronen ein magnetisches Moment $\mu_N = -1{,}9135\,\mu_K$

(das negative Vorzeichen zeigt an, daß Spin und magnetisches Moment entgegengesetzt gerichtet sind). Zur Deutung des magnetischen Moments der Neutronen nimmt man ebenfalls eine innere Struktur an, etwa derart, daß diese an der Oberfläche eine negative, im Inneren aber eine positive Ladung tragen. Für die mangelnde Übereinstimmung der theoretisch berechneten und der experimentell gefundenen magnetischen Momente der Atomkerne gibt es noch keine befriedigende Theorie.

Zur experimentellen Bestimmung der Kernmomente dienen die bereits in Abschnitt 2.3. erwähnten Verfahren: Untersuchung der Hyperfeinstruktur der Atomspektren, Mikrowellen-Spektroskopie, Radiofrequenz-Spektroskopie, Ablenkung von Molekularstrahlen in einem inhomogenen magnetischen Feld.

Tab. 2.2. gibt eine Übersicht über die Eigenschaften von Nukliden mit gerader und ungerader Anzahl von Protonen bzw. Neutronen.

Tabelle 2.2.
Übersicht über die Kerneigenschaften von g, g-, u, u-, g, u- und u, g-Kernen

Art der Kerne	Massenzahl A	Kernspin I	Magnetisches Dipolmoment μ	Statistik
g, g-Kerne	gerade	0	keine Aussage	Bose-Einstein
u,u-Kerne	gerade	1, 2, 3, 4, 6	meist positiv	Bose-Einstein
g, u-Kerne	ungerade	$\frac{1}{2}, \frac{3}{2}, \frac{5}{2}, \frac{7}{2}, \frac{9}{2}$	meist klein oft negativ	Fermi-Dirac
u, g-Kerne	ungerade	$\frac{1}{2}, \frac{3}{2}, \frac{5}{2}, \frac{7}{2}, \frac{9}{2}$	meist groß und positiv	Fermi-Dirac

Das magnetische Moment $\vec{\mu}_I$ eines Kerns ist ebenso wie das Drehmoment ein Vektor; es wird oft angegeben durch das gyromagnetische Verhältnis oder den Kern-g-Faktor g_I:

$$\vec{\mu}_I = g_I \vec{I} \mu_K. \tag{2.14}$$

g_I kann positiv oder negativ sein, je nachdem ob Spin und magnetisches Dipolmoment gleich oder entgegengesetzt gerichtet sind.

Die magnetischen und elektrischen Eigenschaften der Atomkerne sind wichtig für die Deutung der Kerneigenschaften und für den Ablauf von Kernreaktionen. Sie gestatten außerdem Aussagen über die Struktur der Kerne. So gilt z. B. für g,g-Kerne $I=0$ und somit auch $\mu_I=0$; d. h. ein g,g-Kern besitzt kein magnetisches Moment.

2.6. Elektrisches Quadrupolmoment

Das elektrische Quadrupolmoment der Kerne ist ein Maß für die Abweichung der Ladungsverteilung von der Kugelsymmetrie und erlaubt somit Aussagen über ihre Gestalt. Geht man davon aus, daß der Atomkern die Form eines Rotationsellipsoids mit den Durchmessern $2a$ (längs der Symmetrieachse) und $2b$ (senkrecht zur Symmetrieachse) hat, in dem die elektrische Ladung gleichmäßig verteilt ist, so erhält man für das elektrische Quadrupolmoment

$$Q = \frac{2}{5} Z (a^2 - b^2). \tag{2.15}$$

Das Vorzeichen kann positiv oder negativ sein, je nachdem ob die Gestalt des Atomkerns mehr einem Ei oder einem flachen Kreisel ähnelt.

Nuklide mit dem Kernspin $I = 0$ oder $\frac{1}{2}\frac{h}{2\pi}$ können kein elektrisches Quadrupolmoment besitzen. Für viele andere Nuklide ist das elektrische Quadrupolmoment bekannt. Es beträgt beispielsweise für ^{2}H : Q= +0,00274 · 10^{-24} cm^2 und für ^{176}Lu : Q=+7 · 10^{-24} cm^2.

Die Methoden zur Bestimmung des elektrischen Quadrupolmoments sind die gleichen wie diejenigen zur Bestimmung des magnetischen Dipolmoments (vgl. Abschnitt 2.5.). Sie beruhen auf der Wechselwirkung des elektrischen Quadrupolmoments des Atomkerns mit dem elektrischen Feld der Elektronen in der Atomhülle.

2.7. Statistik

Die Eigenschaften einer Gruppe von Photonen oder Elektronen, Protonen, Neutronen oder Atomkernen können nicht durch die klassische

Statistik beschrieben werden. Durch Anwendung der Gesetze der Quantenmechanik, die für diese Teilchen gültig sind, können zwei neue Statistiken abgeleitet werden, die Fermi-Dirac-Statistik und die Bose-Einstein-Statistik. Diese unterscheiden sich durch den Einfluß, den eine Koordinatenänderung für identische Teilchen auf die Wellenfunktion ausübt. Alle Teilchen werden durch 4 Koordinaten (3 Raumkoordinaten und ihren Spin) charakterisiert.

In der Fermi-Dirac-Statistik ändert die Wellenfunktion ihr Vorzeichen, wenn alle Koordinaten von zwei identischen Teilchen vertauscht werden (antisymmetrische Wellenfunktion). Dies bedeutet, daß jeder Quantenzustand nur durch ein Teilchen besetzt werden kann; d. h. es gilt das Pauli-Prinzip. Aus dem Experiment ergibt sich, daß folgende Teilchen der Fermi-Dirac-Statistik gehorchen (antisymmetrische Wellenfunktion): Elektronen, Protonen, Neutronen sowie alle Kerne mit ungerader Massenzahl A.

In der Bose-Einstein-Statistik ändert die Wellenfunktion ihr Vorzeichen nicht, wenn alle Koordinaten von zwei identischen Teilchen vertauscht werden (symmetrische Wellenfunktion). Das bedeutet, daß sich zwei oder mehr Teilchen im gleichen Quantenzustand befinden können; das Pauli-Prinzip gilt in diesem Falle nicht. Das Experiment zeigt, daß Photonen sowie Kerne mit gerader Massenzahl A der Bose-Einstein-Statistik gehorchen.

Damit besteht auch ein Zusammenhang zwischen dem Kernspin und der Statistik (vgl. Abschnitt 2.5.): Nuklide, die der Fermi-Dirac-Statistik gehorchen, besitzen einen ungeraden halbzahligen Kernspin, Nuklide, die der Bose-Einstein-Statistik gehorchen, einen ganzzahligen Kernspin.

Die Feststellung, welcher Statistik die Nuklide gehorchen, ist wichtig für die Diskussion von Kernmodellen. Die Statistik kann aus den Intensitäten der Rotationsbanden in den Spektren von solchen zweiatomigen Molekülen ermittelt werden, die aus identischen Nukliden bestehen (z. B. H_2, D_2). Im Falle der Gültigkeit der Fermi-Dirac-Statistik sind die ungeradzahligen Rotationszustände stärker besetzt, im Falle der Gültigkeit der Bose-Einstein-Statistik die geradzahligen.

2.8. Parität

Die Parität bezieht sich ebenfalls auf die Symmetrieeigenschaft der Wellenfunktion des Kerns. Die Wellenfunktion ψ eines Teilchens ist

eine Funktion der Raumkoordinaten x, y, z und der Spinquantenzahl s. Die Wahrscheinlichkeit, das Teilchen an einer bestimmten Stelle (x, y, z) und mit einem bestimmten Spin s zu finden, ist gegeben durch $|\psi|^2$. Diese Wahrscheinlichkeit muß unabhängig davon sein, ob wir rechtshändig oder linkshändig sind, d. h. unabhängig davon, ob wir die Koordinaten (x, y, z, s) oder $(-x, -y, -z, s)$ wählen. Diese Transformation der Koordinaten ist äquivalent der Spiegelung des Teilchens im Nullpunkt des Koordinatensystems (x, y, z). Dabei muß die Wellenfunktion ψ unverändert bleiben, oder sie darf höchstens ihr Vorzeichen ändern, damit $|\psi|^2$ sich nicht ändert, d. h. damit die oben angegebene Bedingung erfüllt ist. Die Wellenfunktion ψ kann dargestellt werden als Produkt aus einer Teilfunktion der Raumkoordinaten $\psi_1(x, y, z)$ und einer Teilfunktion des Spins $\psi_2(s)$. Ändert die erste Teilfunktion ihr Vorzeichen nicht, wenn das Vorzeichen aller Raumkoordinaten geändert wird, so spricht man von gerader Parität, im anderen Falle von ungerader Parität:

$$\begin{aligned} \psi_1(-x,-y,-z) &= \psi_1(x,y,z) \quad \text{gerade Parität} \\ \psi_1(-x,-y,-z) &= -\psi_1(x,y,z) \quad \text{ungerade Parität} \end{aligned} \tag{2.16}$$

Die „innere“ Parität eines Elektrons wird willkürlich als gerade definiert. Aus experimentellen Daten folgt, daß die „innere“ Parität des Protons, des Neutrons und des Neutrinos ebenfalls gerade ist, während die Parität eines Photons (γ-Quants) ungerade ist.

Die Parität eines Kerns steht in Beziehung zu seinem Bahndrehimpuls. Ist die Quantenzahl des Bahndrehimpulses L eine gerade Zahl, so ist die Parität gerade; ist L eine ungerade Zahl, so ist die Parität ungerade. Ein System von Teilchen besitzt gerade Parität, wenn die Summe der Werte von L für alle Teilchen eine ganze Zahl ist, und ungerade Parität, wenn diese Summe eine ungerade halbe Zahl ist. Das bedeutet beispielsweise, daß ein System aus zwei Teilchen mit ungerader (oder gerader) Parität stets auch gerade Parität hat, während ein System aus einem Teilchen mit gerader Parität und einem Teilchen mit ungerader Parität ungerade Parität besitzt.

Für die Parität gilt ebenso wie für den Drehimpuls ein Erhaltungssatz: Bei Kernreaktionen bleibt die Parität des Systems erhalten. Ob ein bestimmter Kern bei einer Kernreaktion oder beim Übergang von einem Energiezustand in einen anderen seine Parität ändert, wird durch die Auswahlregeln „ja“ oder „nein“ angegeben. „Ja“ bedeutet, daß der betreffende Kern seine Parität ändert. Für sog. schwache

Wechselwirkungen gilt der Satz von der Erhaltung der Parität nicht (vgl. Abschnitt 7.3.2.).

2.9. Energiediagramme

Zur Beschreibung der Energiezustände und der Energieübergänge von Atomkernen sowie zur Beschreibung der Energieänderungen bei Kernreaktionen benutzt man Energiediagramme. Da Energie und Masse äquivalent sind, geben diese Diagramme auch die Massenänderungen an. Bei geladenen Teilchen sind die Elektronen der Atomhülle stets mitgerechnet. Nuklide mit verschiedener Ordnungszahl werden nebeneinander angeordnet, und zwar in der Reihenfolge steigender Ordnungszahlen. Aus solchen Diagrammen können die Energiebeträge, die beim Übergang eines Nuklids vom angeregten Zustand in den Grundzustand oder beim radioaktiven Zerfall frei werden, direkt abgelesen werden (Zerfallschema).

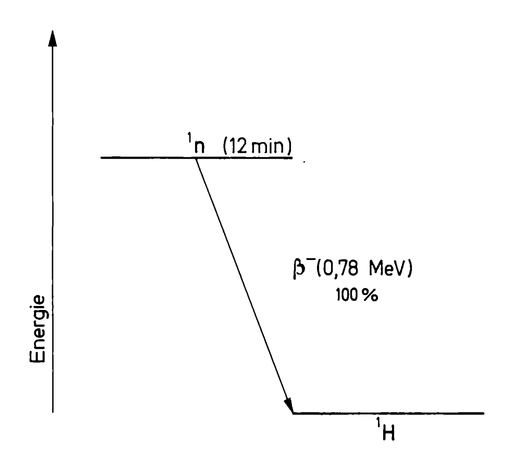


Abb. (2–5) Energiediagramm für den Zerfall des Neutrons.

Als einfaches Beispiel ist in Abb. (2–5) der Zerfall eines Neutrons in einem Energiediagramm aufgezeichnet. Die Energiedifferenz wird beim Übergang eines Neutrons in ein Proton frei; das Proton wird als Wasserstoffatom gerechnet (d. h. Proton + Elektron). Als weiteres Beispiel sind in Abb.(2–6) die Energien für verschiedene Kombinationen von 2 Protonen und 2 Neutronen angegeben. Die obere Bezugslinie entspricht einem System von 2 Wasserstoffatomen und 2 freien Neutronen. Geht man davon zu zwei Deuteriumatomen über,

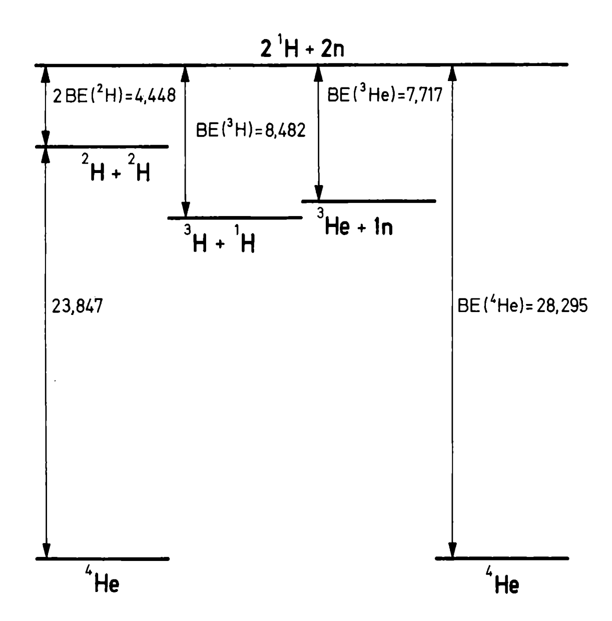


Abb. (2–6) Energiediagramm für verschiedene Kombinationen von 2 Protonen und 2 Neutronen (Energien in MeV).

so findet man für die Bindungsenergie 2 BE (^{2}H) $=$ 4,448 MeV. Ein besonders hoher Energiebetrag wird frei, wenn ein Heliumatom entsteht (28,295 MeV). Außerdem kann man aus diesem Diagramm direkt ablesen, daß bei der Bildung eines Heliumatoms aus 2 Deuteriumatomen ein Energiebetrag von 23,847 MeV frei wird. Derartige Reaktionen spielen bei der Kernfusion eine wichtige Rolle.

In Abb. (2–7) sind neben den Grundzuständen des C–12 und seiner benachbarten Isobaren auch einige angeregte Zustände eingezeichnet. Der β^--Zerfall des B–12 führt entweder zum Grundzustand des C–12 oder zu einem angeregten Zustand. Im letzteren Falle wird die Anregungsenergie in einer Stufe oder in mehreren Stufen durch Aussendung von γ-Quanten abgegeben. Die Energie dieser γ-Quanten kann aus dem Energiediagramm abgelesen werden.

In den Energiediagrammen der Nuklide sind häufig auch der Kernspin und die Parität eingetragen. So bedeuten $I = 2+$: Kernspin 2, gerade Parität; $I = \frac{5}{2}-$: Kernspin $\frac{5}{2}$, ungerade Parität. Darüber hinaus werden zur näheren Charakterisierung die Quantenzahl L für den Gesamtbahndrehimpuls und die Quantenzahl S für den Gesamt-

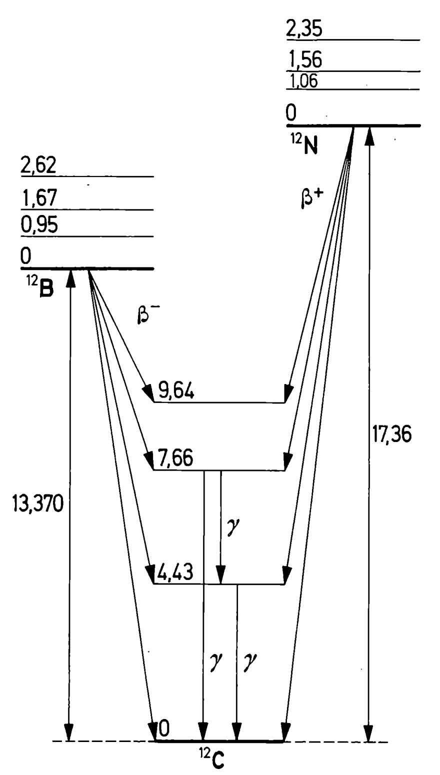


Abb. (2–7) Energiediagramm für die isobaren Nuklide ^{12}B, ^{12}C, ^{12}N (Energien in MeV).

spindrehimpuls angegeben. In Anlehnung an die Atomspektroskopie wird die Quantenzahl L durch folgende Buchstaben ersetzt:

$L =$	0	1	2	3	4	5
Symbol	S	P	D	F	G	H

Die Quantenzahl S wird durch ihre Multiplizität $2S + 1$ ausgedrückt; diesen Wert schreibt man oben links an das Symbol für L. Der Kernspin wird unten rechts angefügt. So schreibt man für $L = 1$, $S = \frac{1}{2}$ und $I = \frac{3}{2}$: $^2P_{3/2}$. In den Abbn. (2–8) und (2–9) sind zwei einfache Beispiele für Energiediagramme aufgezeichnet. Solche Energiediagramme sind für die Diskussion von Kernreaktionen wichtig. Neben der Art der Umwandlung ist die Energie bzw. Maximalenergie der Strahlung angegeben, beim Elektroneneinfang (K-Strahlung) die Zerfallsenergie ΔE. Beim α-, β- und γ-Zerfall setzt sich die Zerfallsenergie

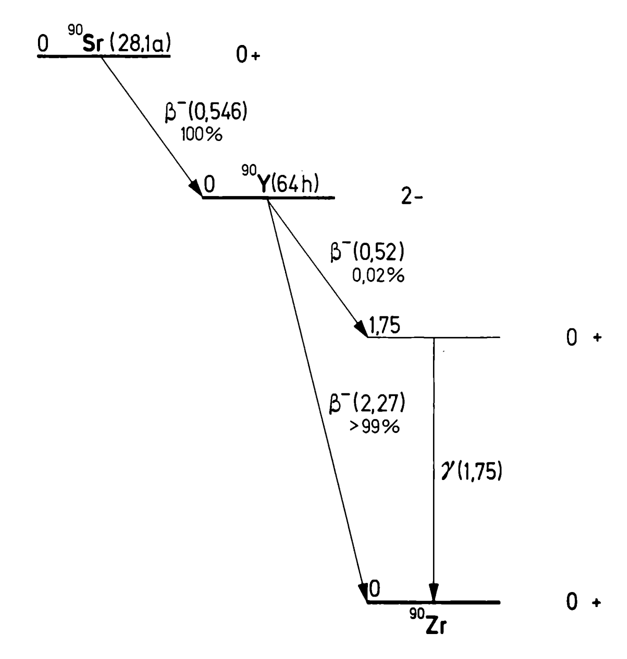


Abb. (2–8) Energiediagramm (mit Kernspin und Parität) für den Zerfall des ^{90}Sr (Energien in MeV).

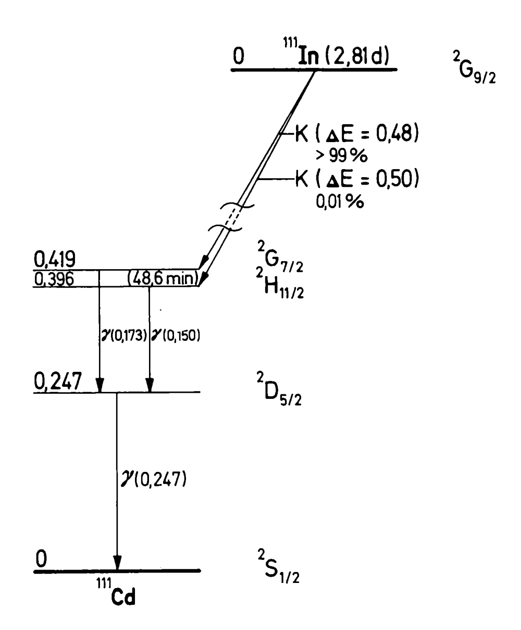


Abb. (2–9) Energiediagramm (mit Termsymbolen) für den Zerfall des ^{111}In (Energien in MeV).

ΔE aus der Energie bzw. Maximalenergie der Strahlung und der Rückstoßenergie des Kerns zusammen; beim β^+-Zerfall ist die Zerfallsenergie außerdem um $2\, m_e c^2 = 1{,}022$ MeV größer als die Maximalenergie der Strahlung (dieser Anteil entspricht der Länge der senkrecht eingezeichneten Linien in den Energiediagrammen). Die Einzelheiten werden in Kapitel 7 erläutert.

2.10. Kernmodelle

Da es noch nicht gelang, eine befriedigende Theorie von der Struktur der Atomkerne aufzustellen, wurden verschiedene Modellvorstellungen entwickelt. Jedes Modell erlaubt die Deutung und zum Teil auch die quantitative Beschreibung einiger Eigenschaften der Atomkerne, aber kein Modell ermöglicht die Erklärung aller Eigenschaften.

Zwei Modelle wurden bereits in Kapitel 1 erwähnt, das Schalenmodell und das Tröpfchenmodell. Das Schalenmodell basiert auf der Tatsache, daß bei bestimmten Protonenzahlen Z und Neutronenzahlen N besonders viele stabile Nuklide auftreten. Diese Zahlen sind (vgl. Nuklidkarte) 2, 8, 20, 50, 82, 126 (magische Zahlen). Die besondere Stabilität der Nuklide, bei denen sowohl Z als auch N magische Zahlen sind (z. B. $^4_2$He, $^{16}_8$O), wird einerseits durch sehr hohe Bindungsenergien angezeigt (vgl. Tab. 1.4.), andererseits durch große Häufigkeit in der Natur. Blei (Z = 82) tritt als stabiles Endprodukt in den radioaktiven Zerfallsreihen des Urans und Thoriums auf. Radionuklide mit 126 Neutronen zeigen lange Halbwertzeiten und niedrige Zerfallsenergien (z. B. At–211, Po–210). Benachbarte Nuklide, die durch radioaktiven Zerfall N = 126 erreichen können, haben besonders kurze Halbwertzeiten und hohe Zerfallsenergien (z. B. At–213, Po–212); Bi–209, das ebenfalls 126 Neutronen besitzt, ist stabil. Außerdem zeigen die Nuklide mit den Neutronenzahlen N = 2, 8, 20, 50, 82, 126 sehr kleine Einfangquerschnitte für thermische Neutronen, und die Bindungsenergien für ein zusätzliches Neutron sind verhältnismäßig klein. Auch mit dem Auftreten isomerer Kerne besteht ein Zusammenhang: Dicht unterhalb der magischen Zahlen 50, 82 und 126 treten besonders häufig isomere Zustände auf. Dicht oberhalb der magischen Zahlen dagegen werden keine Kernisomere gefunden.

Diese Beobachtungen führten zu der Auffassung, daß die Protonen und die Neutronen innerhalb der Kerne in Schalen angeordnet sind, ähnlich wie die Elektronen in der Atomhülle. Es wird angenommen,

daß die Nukleonen sich auf bestimmten Bahnen bewegen, die durch das von der Gesamtheit der Nukleonen erzeugte Potential bestimmt sind; die Wechselwirkung zwischen den einzelnen Nukleonen sollte dabei von untergeordneter Bedeutung sein. Dieses Modell wird als Modell der unabhängigen Teilchen oder als Schalenmodell bezeichnet. Die Analogie zum Verhalten der Elektronen im Kraftfeld des Kerns kommt in diesem Modell deutlich zum Ausdruck: Das von den Nukleonen erzeugte Kraftfeld im Kern entspricht dem Coulombschen Kraftfeld in der Atomhülle, der Quantenzustand des Nukleons dem Quantenzustand eines Elektrons in der Hülle. Um Übereinstimmung mit den experimentellen Ergebnissen zu erhalten, ist es zusätzlich notwendig, anzunehmen, daß die Energie eines Nukleons verschieden ist, je nachdem, ob sein Spindrehimpuls und sein Bahndrehimpuls parallel oder antiparallel gerichtet sind (starke Spin-Bahn-Kopplung). Dies ist zwar theoretisch noch nicht verständlich, die Rechnung ergibt jedoch die richtigen Werte. Mit 2, 8, 20, 50, 82 und 126 Teilchen sind die Schalen aufgefüllt. Die Ergebnisse einer solchen Behandlung sind in Abb.(2–10) aufgezeichnet.

Das Schalenmodell liefert auch richtige Werte für den Gesamtdrehimpuls der Kerne. Die magnetischen Dipolmomente und die elektrischen Quadrupolmomente können ebenfalls auf Grund des Schalenmodells gedeutet werden. So sind die Quadrupolmomente bei den Ordnungszahlen $Z=2$, 8, 20, 50 und 82 sehr klein oder Null. Beginnt die Auffüllung einer neuen Schale, so ist das Quadrupolmoment zunächst negativ; es wird dann mit steigender Protonenzahl positiv, erreicht einen Maximalwert, wenn die Schale etwa zu zwei Drittel gefüllt ist, und fällt dann wieder ab. In manchen Fällen ist das Quadrupolmoment allerdings sehr hoch; man nimmt an, daß dann der gesamte Kern (d. h. auch die aufgefüllten Schalen) unter dem Einfluß der Nukleonen der nicht aufgefüllten Schale deformiert wird.

Auf das Tröpfchenmodell des Atomkerns haben wir bereits in den Abschnitten 1.5. und 2.2. Bezug genommen, insbesondere zur Erläuterung der Kernkräfte. Dieses Modell erlaubt die Deutung einer Reihe von Kerneigenschaften, die auf Grund des Schalenmodells nicht erklärt werden können. Zu diesen Eigenschaften gehören: die nahezu konstante Dichte der Atomkerne, die nahezu konstante Bindungsenergie pro Nukleon, die systematische Änderung der Energie der α-Strahlen mit N und Z, die Instabilität der schweren Kerne, die Spaltbarkeit des U–235 und anderer Nuklide mit ungerader Neutronenzahl durch thermische Neutronen.

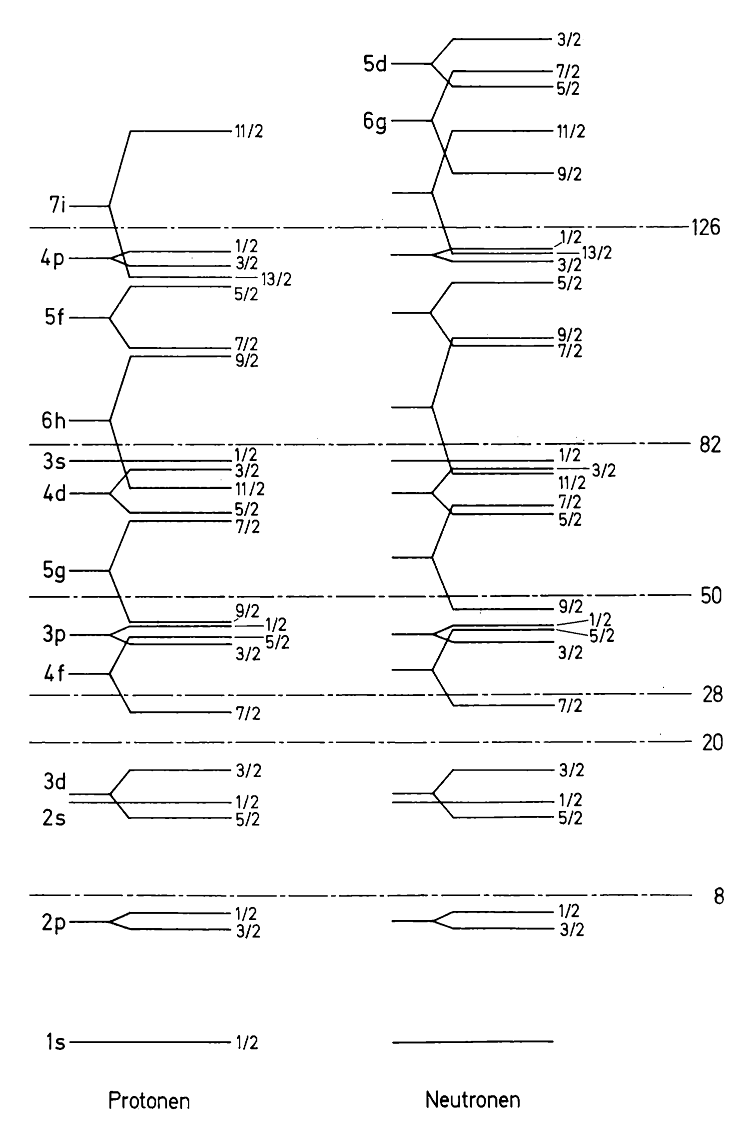


Abb. (2–10) Schalenmodell des Atomkerns (Modell der unabhängigen Teilchen). Aus P. E. A. KLINKENBURG: Rev. mod. Physics **24** (1952) 63.

Das Tröpfchenmodell steht in starkem Gegensatz zum Modell der unabhängigen Teilchen (Schalenmodell). Bei dem Schalenmodell wird nur eine schwache Wechselwirkung der Nukleonen angenommen, beim Tröpfchenmodell dagegen eine starke Wechselwirkung. Das Tröpfchenmodell führt zur Aufstellung der Weizsäckerschen Formel für die Bindungsenergie der Nukleonen im Kern (Abschnitt 1.5.). Es entspricht außerdem der von BOHR entwickelten Vorstellung vom

Zwischenkern bei Kernreaktionen (vgl. Abschnitt 8.1.). Das Tröpfchenmodell gibt allerdings keine befriedigende Erklärung für die angeregten Zustände eines Kerns. Als recht brauchbar für die Deutung der Kernspaltung erweist sich das Bild von einem oszillierenden Tropfen, der sich mit wachsender Größe (wachsender Nukleonenzahl) immer stärker deformieren kann, besonders dann, wenn von außen eine Anregungsenergie zugeführt wird (z. B. durch Einfang eines Neutrons).

Das Tröpfchenmodell beschreibt das „Kollektivverhalten" des Atomkerns, d. h. das Verhalten der Gesamtheit der Nukleonen. Die individuellen Eigenschaften der Nukleonen im Kern werden besser durch das Schalenmodell erfaßt. Deshalb sucht man nach einem übergeordneten Modell, das sowohl das Gesamtverhalten als auch die Eigenschaften der einzelnen Nukleonen im Kern richtig beschreibt. Ein solches Modell ist das Kollektivmodell. Nach diesem Modell besitzt der Atomkern eine Schalenstruktur und ist zu Oszillationen befähigt; gleichzeitig rotiert er. Die Nukleonen wirken durch Zentrifugalkräfte auf die Oberfläche, die infolgedessen keine Kugelgestalt besitzt. Die Rotationsenergie kann experimentell untersucht werden. Die bisherigen Ergebnisse sind befriedigend.

Bei höheren Anregungsenergien erweist sich das Modell der unabhängigen Teilchen (Schalenmodell) als völlig unzureichend. Ein Teilchen, das auf den Kern auftrifft, tritt im allgemeinen mit allen Nukleonen des Kerns in Wechselwirkung; die Anregungsenergie wird aufgeteilt. In diesem Falle benutzt man ein statistisches Modell (statistisches Modell der angeregten Zustände).

Literatur zu Kapitel 2

1. W. Finkelnburg: Einführung in die Atomphysik. Springer-Verlag, Berlin-Göttingen-Heidelberg 1956.
2. I. Kaplan: Nuclear Physics, 2. Aufl. Addison-Wesley Publ. Comp., Reading, Mass. 1964.
3. G. Friedlander, J. W. Kennedy, J. M. Miller: Nuclear and Radiochemistry, 2. Aufl. John Wiley and Sons, New York 1964.
4. R. D. Evans: The Atomic Nucleus. McGraw-Hill Book Comp., New York 1955.
5. M. Goeppert-Mayer, J. A. Jensen: Elementary Theory of Nuclear Shell Structure. John Wiley and Sons, New York 1955.
6. M. Goeppert-Mayer: Das Schalenmodell des Atomkerns. Angew. Chem. **76** (1964) 729.
7. H. v. Buttlar: Einführung in die Grundlagen der Kernphysik. Akademische Verlagsgesellschaft, Frankfurt a. M. 1964.

8. LANDOLT-BÖRNSTEIN: Zahlenwerte und Funktionen aus Physik, Chemie, Astronomie, Geophysik und Technik. 6. Aufl. Bd. I: Atom- und Molekularphysik. Tl. 5: Atomkerne und Elementarteilchen. Hrsg. K. H. HELLWEGE. Springer-Verlag, Berlin-Göttingen-Heidelberg 1952.
9. LANDOLT-BÖRNSTEIN: Zahlenwerte und Funktionen aus Naturwissenschaften und Technik. Neue Serie. Gruppe I: Kernphysik und Kerntechnik. Bd. I: Energie-Niveaus der Kerne A = 5 bis A = 257. Hrsg. A. M. HELLWEGE u. K. H. HELLWEGE. Springer-Verlag, Berlin-Göttingen-Heidelberg 1961.
10. Table of Isotopes, Hrsg. C. M. LEDERER, J. M. HOLLANDER u. I. PERLMAN, John Wiley and Sons, New York, 6. Auflage 1967.
11. N. F. RAMSAY: Nuclear Moments and Statistics. In Experimental Nuclear Physics. Bd. I. Hrsg. E. SEGRÈ. John Wiley and Sons, New York 1953, S. 358
12. Handbuch der Physik. Hrsg. S. FLÜGGE. Bd. 39: Bau der Atomkerne. Springer-Verlag, Berlin-Göttingen-Heidelberg 1957.

Übungen zu Kapitel 2

1. Unter Verwendung des Wertes $r_0 = 1{,}4$ F zeichne man den effektiven Durchmesser der Atomkerne als Funktion der Massenzahl A.

2. Wie groß ist die Quantenzahl T für den Isospin von O–16, J–127 und U–238?

3. Wie groß ist das Massenäquivalent eines Photons mit einer Energie von 1 MeV?

4. Wie groß ist der Kernspin (Quantenzahl für den Kerndrehimpuls) von S–32 und Ca–40 im Grundzustand?

5. Man zeige mit Hilfe des Erhaltungssatzes für den Kernspin am Beispiel des N–14, daß die Proton-Elektron-Hypothese vom Aufbau der Atomkerne nicht richtig sein kann.

6. Welches Verhältnis der Hauptachsen berechnet man für den Kern des Lu–176 aus dem elektrischen Quadrupolmoment $Q = + 7 \cdot 10^{-24}\,\text{cm}^2$? (In erster Näherung rechne man mit $a = r_0 \cdot A^{1/3}$, $r_0 = 1{,}4$ F).

7. Man zeichne das Energiediagramm für den radioaktiven Zerfall des Na–24.

3. Isotopieeffekte

3.1. Unterschiede in den Eigenschaften isotoper Nuklide

Bei der Einführung des Begriffes der Isotopie definierte SODDY (1913) die Isotope als Atomarten, die den gleichen Platz im Periodensystem besetzen (d. h. chemisch identisch sind) und sehr wahrscheinlich auf Grund ihrer physikalischen Eigenschaften nicht getrennt werden können. Tatsächlich sind aber Unterschiede in den Eigenschaften vorhanden, die um so deutlicher in Erscheinung treten, je größer der relative Massenunterschied ist. Beim Element Wasserstoff benutzt man sogar verschiedene Bezeichnungen für die einzelnen Isotope: $^2H = D$ (Deuterium), $^3H = T$ (Tritium).

Die Unterschiede im Verhalten isotoper Nuklide lassen sich in zwei Gruppen einteilen:

1. Unterschiede, die auf speziellen Kerneigenschaften beruhen (z. B. Kernspin, Statistik, Wirkungsquerschnitt, Energiezustände)
2. Unterschiede, die ausschließlich auf die verschiedene Masse zurückzuführen sind. In diesem Fall spricht man von Isotopieeffekten.

1. Unterschiede auf Grund verschiedener spezieller Kerneigenschaften

Die Unterschiede in den Kerneigenschaften einzelner Isotope sind oft sehr ausgeprägt, insbesondere hinsichtlich des Wirkungsquerschnitts für Kernreaktionen. Davon wird in Abschnitt 4.1. etwas ausführlicher die Rede sein. Diese Unterschiede spielen eine wichtige Rolle für den Betrieb von Kernreaktoren und geben deshalb Veranlassung zum Aufbau großtechnischer Anlagen für die Isotopentrennung.

Sehr deutliche Unterschiede findet man auch bei Ortho- und Parawasserstoff. In Orthowasserstoff ($o\text{-}H_2$) ist der Kernspin der beiden Wasserstoffatome parallel, in Parawasserstoff ($p\text{-}H_2$) antiparallel gerichtet. Daraus ergeben sich Unterschiede in der Rotationsenergie und den Rotationsspektren, der spezifischen Wärme, der Wärmeleitfähigkeit und der Viskosität. Bei tiefer Temperatur ist im Gleichgewicht vor-

wiegend p–H_2 vorhanden, das die Rotationsenergie 0 besitzt ($J=0$). Bei Raumtemperatur ist das Verhältnis o–H_2 : p–H_2 $\approx$ 3 für H_2 und $\approx$ 2 für D_2. Die Umwandlungsgeschwindigkeit o–H_2 $\rightarrow$ p–H_2 ist für H_2 etwa 2- bis 4mal größer als für D_2. Die Umwandlung kann entweder durch Temperaturerhöhung oder durch Wechselwirkung mit paramagnetischen Substanzen beschleunigt werden.

Bei Helium treten ebenfalls Unterschiede auf, aber von anderer Art als bei Wasserstoff. He–4 gehorcht der Bose-Einstein-Statistik, He–3 dagegen der Fermi-Dirac-Statistik. He–4 zeigt eine allotrope Umwandlung bei 2,18 °K. Die unterhalb dieser Temperatur beständige He(II)-Modifikation besitzt sehr ungewöhnliche Eigenschaften (Supraleitfähigkeit und Superfluidität). Bei He–3 tritt diese Modifikation nicht auf.

2. Unterschiede auf Grund verschiedener Masse (Isotopieeffekte)

Die Unterschiede, die auf der verschiedenen Masse beruhen, sind im allgemeinen recht klein, sie können aber zur Trennung dienen. So findet man Unterschiede in den physikalischen Eigenschaften (z. B. Schmelzpunkt, Siedepunkt, Dichte, Dampfdruck), in den Schwingungs- und Rotationsspektren von Molekülen, in einzelnen Fällen auch in der Struktur fester Verbindungen.

Die Unterschiede in den physikalischen Eigenschaften (Dichte, Schmelzpunkt, Siedepunkt u. a.) sind am stärksten ausgeprägt bei Wasserstoff und seinen Verbindungen. In Tab. 3.1. sind die physikalischen Eigenschaften von Wasserstoff zusammengestellt, in Tab. 3.2. die des Wassers.

Das Dampfdruckverhältnis der aus verschiedenen Isotopen bestehenden Moleküle kann durch folgende Beziehung beschrieben werden:

$$\lg \frac{p_1}{p_2} = \frac{a}{T} + b. \tag{3.1}$$

Für H_2O und D_2O gilt: $a = 55{,}32$; $b = -0{,}1267$; für $H_2{}^{16}O$ und $H_2{}^{18}O$ gilt: $a=3{,}20$; $b=-0{,}0068$.

In schwerem Wasser ist die Löslichkeit vieler Salze und organischer Verbindungen niedriger als in normalem Wasser; die Unterschiede betragen bis zu 30%. Außerdem ist die Ionenbeweglichkeit und damit die Leitfähigkeit von Elektrolyten in D_2O geringer als in H_2O; auch die Dissoziationskonstanten der Säuren und Basen sind in D_2O kleiner.

Tabelle 3.1.
Physikalische Eigenschaften von Wasserstoff

Eigenschaften	H_2	HD	D_2	T_2
Siedepunkt in °K	20,39	22,13	23,67	25,04
Gefrierpunkt in °K	13,95	16,60	18,65	—
Verdampfungswärme beim Siedepunkt in cal Mol^{-1}	216	—	293	333
Schmelzwärme in cal Mol^{-1}	28,0	37,0	47,0	—
Kritische Temperatur in °K	32,99	35,41	38,96	—
Kritischer Druck in atm	12,77	14,64	16,28	—
Kritisches Volumen in cm^3 Mol^{-1}	65,5	62,3	60,3	—
Tripelpunkt in °K	13,96	16,6	18,73	20,62
Druck beim Tripelpunkt in mm Hg	54,0	92,8	128,6	162,0
Dichte im flüssigen Zustand in g cm^{-3}	0,08	—	0,170	0,182
Enthalpie $\Delta H°$ bei 25 °C in kcal Mol^{-1}	0	+0,15	0	0
Freie Energie $\Delta G°$ in kcal Mol^{-1}	0	−0,36	0	0
Entropie $S°$ in cal Mol^{-1} $grad^{-1}$	31,23	34,39	34,62	39,39

Werte aus:

E. R. GRILLY: J. Amer. chem. Soc. **73** (1951) 843, 5307.
H. J. HOGE, R. D. ARNOLD: J. Res. natl. Bur. Standards **47** (1951) 63.
H. J. HOGE, J. W. LASSITER: J. Res. natl. Bur. Standards **47** (1951) 75.
A. H. KIMBALL, H. C. UREY, J. KIRSHENBAUM: Bibliography on Heavy Hydrogen Compounds. McGraw-Hill Book Comp., New York 1949.

Wenn feste Verbindungen Wasserstoffatome enthalten, so ist es für die Struktur manchmal von großer Bedeutung, ob H-Atome oder D-Atome vorhanden sind. So zeigt KD_2PO_4 eine andere Struktur als KH_2PO_4. In organischen Verbindungen wurde bei der Substitution von H durch D eine meßbare optische Aktivität gefunden, z. B. in α-Deuteroäthylbenzol, $C_6H_5CHDCH_3$, $[\alpha]_D^{25} = -0{,}30°$.

Im Bereich sehr tiefer Temperaturen zeigen Mischungen von H_2 und D_2 bzw. He–4 und He–3 Abweichungen vom Raoultschen Gesetz und vom Verhalten idealer Lösungen. Dies ist nach PRIGOGINE auf eine zusätzliche Mischungswärme zurückzuführen, die auf den Massenunterschieden beruht. Bei 0 °K ist der stabilste Zustand dadurch gegeben, daß die Isotope getrennt vorliegen.

Auch bei mittelschweren und schweren Elementen treten mannigfache Isotopieeffekte auf. Am bekanntesten ist die Isotopenverschiebung der Spektrallinien. Ein Beispiel ist in Tab. 3.3. angegeben.

Tabelle 3.2.
Physikalische Eigenschaften von H_2O und D_2O

Eigenschaften	H_2O		D_2O	
Siedepunkt in °C	100		101,42	
Gefrierpunkt in °C	0		3,8	
Temperatur des Dichtemaximums in °C	3,96		11,6	
Verdampfungswärme bei 25 °C in kcal Mol^{-1}	10,515		10,844	
Schmelzwärme in kcal Mol^{-1}	1,436		1,515	
Dichte bei 20 °C in g cm^{-3}	0,99823		1,10530	
Maximale Dichte in g cm^{-3}	1,000 bei 4 °C		1,106 bei 11,6 °C	
Dielektrizitätskonstante bei 25 °C	78,54		77,936	
Kryoskopische Konstante in grad g Mol^{-1}	1,859		2,050	
Viskosität bei 25 °C in mP	8,91		10,99	
Ionenprodukt bei 25 °C in $Mol^2\,l^{-2}$	$1{,}01 \cdot 10^{-14}$		$0{,}195 \cdot 10^{-14}$	
Nullpunktsenergie in cal Mol^{-1}	13,219		9,664	
Elektrodenpotential H_2/H^+ bei 25 °C in Volt	0		- 0,0035 in D_2O	
Ionenbeweglichkeit H_3O^+ bzw. D_3O^+ bei 18 °C in $Ohm^{-1}\,cm^2\,Mol^{-1}$	315,2		213,7	
Ionenbeweglichkeit OH^- bzw. OD^- bei 25 °C in $Ohm^{-1}\,cm^2\,Mol^{-1}$	197,6		119,0	
	gasförmig	flüssig	gasförmig	flüssig
$\Delta H°$ in kcal Mol^{-1}	−57,80	−68,32	−59,25	−70,40
$\Delta G°$ in kcal Mol^{-1}	−54,63	−56,68	−55,74	−58,29
Entropie in cal Mol^{-1} $grad^{-1}$	45,13	16,67	47,38	18,08

Werte aus:

J. Kirshenbaum: The Physical Properties of Heavy Water. McGraw-Hill Book Comp., New York 1954.

A. I. Brodsky: Isotopenchemie. Akademie der Wissenschaften, Moskau 1957 (russ.).

Die Unterschiede in den Schwingungsspektren von Molekülen, die verschiedene Isotope enthalten, sind verhältnismäßig gut erfaßbar. So beträgt die Schwingungsenergie eines zweiatomigen Moleküls AB

$$E_s = \left(v + \frac{1}{2}\right)h\nu - \left(v + \frac{1}{2}\right)hx\nu. \tag{3.2}$$

v ist die Schwingungsquantenzahl ($v=0, 1, 2 \ldots.$), h die Plancksche

Tabelle 3.3.
Verschiebung der Spektrallinien bei Uranisotopen

Uranisotop	Wellenlänge λ der Spektrallinie in Å	Verschiebung $\Delta\lambda$ gegenüber ^{238}U in Å
^{238}U	4244,373	—
^{236}U	4244,226	0,147 $\pm$ 0,010
^{235}U	4244,122	0,251 $\pm$ 0,002
^{234}U	4244,075	0,298 $\pm$ 0,003
^{233}U	4243,977	0,396 $\pm$ 0,005

Werte aus:
D. D. Smith, G. L. Stukenbroeker, J. R. McNally jr.: Physic. Rev. **84** (1951) 383.

Konstante und ν die Schwingungsfrequenz. Der erste Term auf der rechten Seite berücksichtigt den harmonischen, der zweite Term den nicht-harmonischen Schwingungsanteil; x ist die Konstante für den nicht-harmonischen Schwingungsanteil. Die Schwingungsfrequenz ν ist gegeben durch

$$\nu = \frac{1}{2\pi}\sqrt{\frac{k}{\mu}}\,; \tag{3.3}$$

k ist die Kraftkonstante und μ die reduzierte Masse,

$$\mu = \frac{M_A \cdot M_B}{M_A + M_B}. \tag{3.4}$$

Tritt anstelle des Isotops mit der Masse M_A das Isotop mit der Masse M'_A (reduzierte Masse μ'), so gilt für die Schwingungsfrequenz ν'

$$\frac{\nu'}{\nu} = \sqrt{\frac{\mu}{\mu'}}\,. \tag{3.5}$$

Berücksichtigt man nur den harmonischen Anteil der Schwingungsenergie, so ist

$$\frac{E'_s}{E_s} = \sqrt{\frac{\mu}{\mu'}}\,, \tag{3.6}$$

d. h., das Molekül mit dem schwereren Isotop besitzt eine niedrigere

Schwingungsenergie. Auch die Nullpunktsenergien sind verschieden. Sie sind gegeben durch

$$E_o = \frac{1}{2} h\nu_o. \quad (3.7)$$

(Schwingungsquantenzahl $v = 0$). In Tab. 3.4. sind Grundfrequenzen, Nullpunktsenergien und Dissoziationsenergien für einige Moleküle AB zusammengestellt, die verschiedene Isotope enthalten. Die Unterschiede in der Dissoziationsenergie entsprechen ungefähr den Unterschieden in der Schwingungsenergie.

Tabelle 3.4.
Grundfrequenzen, Nullpunktsenergien und Dissoziationsenergien von zweiatomigen Molekülen

Molekül	Grundfrequenz*) $\omega_o = \nu_o/c$ in cm^{-1}	Nullpunktsenergie E_o in kcal Mol^{-1}	Dissoziationsenergie E_D in kcal Mol^{-1}
H_2	4405,3	6,212	103,26
HD	3817,1	5,390	104,08
D_2	3118,8	4,411	105,06
HT	3608,4	5,073	104,38
DT	2845,6	4,030	105,44
T_2	2553,8	3,603	105,86
NaH	1170,8	1,610	51,6
NaD	845,3	1,202	52,0
$H^{35}Cl$	2989,0	4,236	102,1
$D^{35}Cl$	2143,5	3,063	103,3
$H^{37}Cl$	2987,5	4,234	102,1
$D^{37}Cl$	2139,5	3,057	103,3
HJ	2309,5	3,274	71,6
DJ	1639,5	2,329	72,5

*) In der Spektroskopie wird die Bezeichnung „Grundfrequenz" für die Wellenzahl im Grundzustand benutzt.

Werte aus:
A. I. Brodsky: Isotopenchemie. Akademie der Wissenschaften, Moskau 1957.

Auch die Rotationsspektren von Molekülen mit verschiedenen Isotopen zeigen Unterschiede, allerdings in geringerem Umfang als die Schwingungsspektren. Für die Rotationsenergie gilt

$$E_r = \frac{h^2}{8\pi^2 I} J(J+1); \quad (3.8)$$

J ist die Rotationsquantenzahl. Da das Trägheitsmoment I der reduzierten Masse μ proportional ist, gilt

$$\frac{E_r'}{E_r} = \frac{\mu}{\mu'}. \tag{3.9}$$

Die in diesem Abschnitt aufgeführten Unterschiede in den Eigenschaften isotoper Nuklide sind auch von Bedeutung für das chemische Verhalten; d. h., die verschiedenen Massenzahlen isotoper Nuklide bedingen kleine Unterschiede in der Reaktionsgeschwindigkeit und im chemischen Gleichgewicht, die auf die verschiedenen Schwingungsfrequenzen und Nullpunktsenergien isotoper Nuklide zurückgeführt werden können. Auf Grund der vorausgehenden Betrachtung kann man folgende Regeln aufstellen:

a) Die Energie der Bindung mit einem schwereren Isotop ist etwas größer (vgl. Tab. 3.4.); z. B. gilt für die Bindungsfestigkeit von C–C-Bindungen folgende Reihenfolge:

$$^{14}C - {}^{12}C > {}^{13}C - {}^{12}C > {}^{12}C - {}^{12}C. \tag{3.10}$$

b) Die Reaktionsgeschwindigkeit des schwereren Isotops ist etwas geringer. So beobachtet man bei der Zersetzung von ^{13}C- bzw. ^{14}C-markierter Malonsäure folgende Geschwindigkeitskonstanten

$$\begin{array}{ll}
{}^{12}COOH \xrightarrow{k_{12}} {}^{12}CO_2 + {}^{12}CH_3\,{}^{13}COOH & \\
\quad | & \\
{}^{12}CH_2 & \dfrac{k_{12}}{k_{13}} \approx 1{,}03 \\
\quad | & \\
{}^{13}COOH \xrightarrow{k_{13}} {}^{13}CO_2 + {}^{12}CH_3\,{}^{12}COOH & \\
 & \\
{}^{12}COOH \xrightarrow{k_{12}} {}^{12}CO_2 + {}^{12}CH_3\,{}^{14}COOH & \\
\quad | & \\
{}^{12}CH_2 & \dfrac{k_{12}}{k_{14}} \approx 1{,}06 \\
\quad | & \\
{}^{14}COOH \xrightarrow{k_{14}} {}^{14}CO_2 + {}^{12}CH_3\,{}^{12}COOH &
\end{array} \tag{3.11}$$

c) In einem chemischen Gleichgewicht tritt das schwerere Isotop bevorzugt in der chemischen Form auf, welche die höhere Bildungswärme besitzt; z. B. ist in dem Gleichgewicht

$$HD(g.) + H_2O(fl.) \rightleftharpoons HDO(fl.) + H_2(g.) \qquad (3.12)$$

das Deuterium im Wasser angereichert; ebenso findet man in dem Gleichgewicht

$$^{15}NH_3(g.) + {}^{14}NH_4{}^+(aq.) \rightleftharpoons {}^{14}NH_3(g.) + {}^{15}NH_4{}^+(aq.) \qquad (3.13)$$

das schwerere Isotop N–15 vorzugsweise in Form des Ammoniumions.

Man unterscheidet kinetische Isotopieeffekte und Gleichgewichtsisotopieeffekte. Kinetische Isotopieeffekte sind durch das Verhältnis der Geschwindigkeitskonstanten für zwei gleichartige Reaktionen gegeben, bei denen Moleküle oder Ionen beteiligt sind, die verschiedene Isotope enthalten (z. B. (3.11)). Gleichgewichtsisotopieeffekte werden durch die Gleichgewichtskonstante einer Austauschreaktion bestimmt (z. B. (3.12)).

Wenn die isotopen Nuklide nicht selbst an der Reaktion teilnehmen, spricht man von einem „sekundären" Isotopieeffekt. Ein Beispiel ist der kinetische Isotopieeffekt bei den Austauschreaktionen

$$RCH_2Cl/{}^*Cl^- \text{ und } RCD_2Cl/{}^*Cl^-.$$

„Sekundäre" Isotopieeffekte sind im allgemeinen kleiner als „primäre" Isotopieeffekte.

Bei der Messung von Isotopieeffekten mit inaktiven Isotopen ist man meist auf das Massenspektrometer bzw. den Massenspektrographen oder auf spektroskopische Methoden angewiesen. Im Massenspektrometer und im Massenspektrographen werden die Atome oder Moleküle ionisiert und im Magnetfeld nach ihrer Masse sortiert. Im Massenspektrometer werden die Teilchen aufgefangen und gezählt; im Massenspektrographen werden sie auf einer Photoplatte aufgefangen. Bei Wasserstoff und Deuterium ist der relative Massenunterschied so groß, daß diese Isotope auch auf Grund ihres verschiedenen Infrarotspektrums unterschieden und gemessen werden können; außerdem sind andere Untersuchungsmethoden möglich, z. B. Dichtemessungen und Messungen des Brechungsindex von Wasser.

Die Messung radioaktiver Nuklide ist zwar im allgemeinen sehr viel empfindlicher als die Messung inaktiver Nuklide; die Messung von Isotopieeffekten mit radioaktiven Nukliden ist aber nicht genauer als diejenige mit inaktiven Nukliden und erfordert ebenfalls einen verhältnismäßig großen Aufwand, wenn es sich nicht gerade um sehr leichte Atome (z. B. Wasserstoff) handelt.

3.2. Kinetische Isotopieeffekte

Die Geschwindigkeitskonstante k einer chemischen Reaktion kann durch die Beziehung

$$k = k_0 e^{-E/RT} \tag{3.14}$$

dargestellt werden. k_0 ist gegeben durch die Zahl der Zusammenstöße pro Zeiteinheit $\dot{n}$ (Frequenzfaktor) und einen für die betreffende Reaktion charakteristischen Faktor P, $k_0 = \dot{n} \cdot P$; E ist die Aktivierungsenergie. Alle Größen können sich beim Ersatz eines Nuklids durch ein isotopes Nuklid ändern. Genaue Voraussagen über die Größe kinetischer Isotopieeffekte sind deshalb sehr schwierig.

Die Zahl der Zusammenstöße pro Zeiteinheit $\dot{n}$ zwischen zwei Molekülen mit den Massen M_1 und M_2 ist nach der kinetischen Gastheorie

$$\dot{n} \sim \sqrt{\frac{M_1 + M_2}{M_1 M_2}}. \tag{3.15}$$

Sie ist außerdem proportional dem Wirkungsquerschnitt der Moleküle, von dem man aber annehmen darf, daß er für isotope Nuklide gleich groß ist. Diese Ergebnisse können in erster Näherung auch auf Reaktionen in Lösung übertragen werden. Enthält das Molekül 1 ein isotopes Nuklid und hat nunmehr die Masse M_1', so gilt

$$\dot{n}' \sim \sqrt{\frac{M_1' + M_2}{M_1' M_2}} \tag{3.16}$$

bzw.

$$\frac{\dot{n}'}{\dot{n}} = \sqrt{\frac{M_1 (M_1' + M_2)}{M_1' (M_1 + M_2)}} = \sqrt{\frac{1 + M_2/M_1'}{1 + M_2/M_1}}. \tag{3.17}$$

Daraus folgt, daß das Molekül mit der größeren Masse eine geringere Zahl von Zusammenstößen hat und auch einen kleineren Wert für den Faktor k_0 besitzen sollte. Handelt es sich z. B. um eine Reaktion von Wasserstoff mit einem schweren Molekül ($M_1 \ll M_2$), so wird

$$\frac{k_{oH}}{k_{oD}} = \frac{\dot{n}_H}{\dot{n}_D} = \sqrt{2}. \qquad (3.18)$$

Die Größe P wird dabei zunächst als unabhängig von der Massenzahl angenommen. Reagieren zwei schwere Moleküle miteinander, so ist der Einfluß der Massenzahl auf $\dot{n}$ sehr gering. Er verschwindet ganz für den Fall, daß $M_2 \gg M_1$ ist.

Einen größeren Einfluß auf den kinetischen Isotopieeffekt übt im allgemeinen der Unterschied in der Aktivierungsenergie aus. Die Aktivierungsenergie ist gleich der Differenz zwischen dem Energieniveau des Übergangszustandes und dem Energieniveau des Anfangszustandes (vgl. Abb.(3–1)). Sowohl im Anfangszustand als auch im Über-

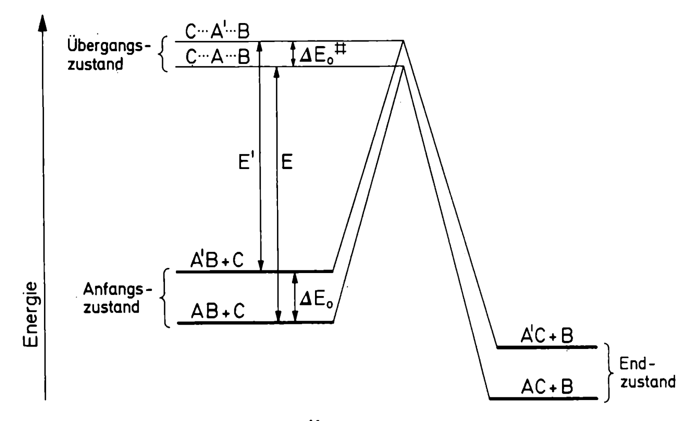


Abb. (3–1) Grundzustand und Übergangszustand für die Reaktionen
AB + C → AC + B (Aktivierungsenergie E)
A′B + C → A′C + B (Aktivierungsenergie E')
$(M_{AB} > M_{A'B})$
Differenz der Nullpunktsenergie im Grundzustand ΔE_0, im angeregten Zustand $\Delta E_0^{\#}$.
Aus $E + \Delta E_0^{\#} = E' + \Delta E_0$ folgt
$\Delta E = E' - E = \Delta E_0^{\#} - \Delta E_0$

gangszustand ist der Unterschied zwischen dem Energieniveau des Moleküls mit dem schwereren Isotop und dem Energieniveau des Moleküls mit dem leichteren Isotop durch die Differenz der Nullpunktsenergien ΔE_0 bzw. $\Delta E_0^{\#}$ gegeben. Dabei hat das Molekül mit dem schwereren Isotop jeweils die niedrigere Nullpunktsenergie (vgl. Abschn. 3.1.). Die Differenz der Aktivierungsenergien ΔE beträgt somit (vgl. Abb. (3–1))

$$\Delta E = \Delta E_0^{\#} - \Delta E_0 . \qquad (3.19)$$

Im Übergangszustand sind die Bindungen mehr oder weniger stark gelockert; d. h. die Kraftkonstante k in Gleichung (3.3) ist klein und damit auch die Schwingungsfrequenz ν sowie die Differenz der Nullpunktsenergien im angeregten Zustand; daraus folgt

$$\Delta E_0^{\#} < \Delta E_0. \tag{3.20}$$

Die größte Schwierigkeit bei der Berechnung der kinetischen Isotopieeffekte besteht darin, daß über den Übergangszustand und infolgedessen auch über $\Delta E_0^{\#}$ keine genaueren Aussagen gemacht werden können. Im Grenzfall sind im Übergangszustand die Bindungen stark gelockert, so daß $\Delta E_0^{\#} = 0$ wird. Dann ist die Differenz der Aktivierungsenergien nur durch die Differenz der Nullpunktsenergien im Anfangszustand gegeben:

$$\Delta E = -\Delta E_0. \tag{3.21}$$

Die vorausgehende Betrachtung zeigt, daß die Aktivierungsenergie für das schwerere Isotop im allgemeinen größer ist; d. h., das schwerere Isotop reagiert langsamer. Bei den Wasserstoffisotopen müssen zusätzlich die Unterschiede in den Rotationsenergien berücksichtigt werden.

Genauere Berechnungen des Isotopieeffektes wurden von EYRING (1935) und von BIGELEISEN (1949) ausgeführt unter Anwendung der Methoden zur Absolutberechnung von Reaktionsgeschwindigkeiten („absolute rate theory“). Nach dieser Theorie gilt für die Geschwindigkeitskonstante

$$k = \chi \frac{k_B T}{h} K^{\#}. \tag{3.22}$$

χ ist der Transmissionskoeffizient; er ist gleich der Wahrscheinlichkeit für die Bildung der Endprodukte aus dem Übergangszustand und wird im allgemeinen gleich 1 gesetzt. $k_B T/h$ ist der Frequenzfaktor und $K^{\#}$ die Gleichgewichtskonstante für die Bildung des Übergangszustandes aus den Reaktionspartnern. Wendet man die bekannten Gesetze der Thermodynamik an, so ist

$$-RT \ln K^{\#} = \Delta H^{\#} - T\Delta S^{\#}. \tag{3.23}$$

$\Delta H^{\#}$ ist die Bildungsenthalpie des Übergangszustandes aus den Reaktionspartnern und somit gleich der Aktivierungsenergie E. Damit folgt

$$k = \chi \frac{k_B T}{h} e^{\Delta S^{\#}/R} e^{-E/RT} \tag{3.24}$$

und durch Vergleich mit Gleichung (3.14)

$$k_o = \chi \frac{k_B T}{h} e^{\Delta S^{\#}/R}. \tag{3.25}$$

χ ändert sich nicht, wenn ein isotopes Nuklid eingeführt wird. Für das Verhältnis der Geschwindigkeitskonstanten gilt dann

$$\frac{k'}{k} = \frac{K^{\#'}}{K^{\#}}. \tag{3.26}$$

Daraus folgt durch Einführung der Zustandssummen Z

$$\frac{k'}{k} = \left(\frac{\mu}{\mu'}\right)^{1/2} \frac{Z}{Z'} \frac{Z^{\#'}}{Z^{\#}}; \tag{3.27}$$

μ bzw. μ' sind die reduzierten Massen der Gruppen, zwischen denen die bei der Reaktion aufbrechende Bindung vorliegt. Die Berechnung der kinetischen Isotopieeffekte aus dieser Gleichung erfordert Kenntnisse über die Struktur und die Frequenzen des Übergangszustandes. Da diese Kenntnisse im allgemeinen fehlen, ist man auf Näherungsrechnungen angewiesen. Eine häufig befriedigende Näherung besteht in der Annahme, daß im Übergangszustand die von der Reaktion betroffene Bindung praktisch schon gelöst ist, während alle anderen Bindungen gegenüber dem Anfangszustand unverändert bleiben. (Diese Annahme ist gleichbedeutend mit der oben gemachten Annahme, daß $\Delta E_o^{\#} = 0$ wird.) Dann ist $Z^{\#'} = Z^{\#}$ und

$$\frac{k'}{k} = \left(\frac{\mu}{\mu'}\right)^{1/2} \frac{Z}{Z'}. \tag{3.28}$$

In diesem Falle verläuft die Reaktion mit dem leichteren Isotop immer rascher als mit dem schwereren Isotop. Dies ergab sich auch bereits aus der vorausgehenden Betrachtung.

Der umgekehrte Fall, daß das leichtere Isotop langsamer reagiert als das schwerere, ist dann möglich, wenn freie isotope Atome an der

Reaktion teilnehmen oder wenn im Übergangszustand die an der Reaktion beteiligten Bindungen stärker sind als im Anfangszustand; in beiden Fällen ist $\Delta E_0 < \Delta E_0^{\neq}$.

BIGELEISEN unterscheidet zwischen intermolekularen und intramolekularen Isotopieeffekten. Bei den intermolekularen Isotopieeffekten wird das kinetische Verhalten von zwei verschiedenen Molekülen verglichen, während bei den intramolekularen Isotopieeffekten das Verhältnis der Geschwindigkeitskonstanten am gleichen Molekül gemessen wird. Ein Beispiel ist die Decarboxylierung der Malonsäure. Der intermolekulare Isotopieeffekt ist gegeben durch das Verhältnis der Geschwindigkeitskonstanten k_{12}/k_{13} für die beiden Reaktionen

$$\begin{array}{l} {}^{12}COOH \\ | \\ {}^{12}CH_2 \\ | \\ {}^{13}COOH \end{array} \xrightarrow{k_{12}} {}^{12}CH_3\,{}^{13}COOH + {}^{12}CO_2$$

und (3.29)

$$\begin{array}{l} {}^{13}COOH \\ | \\ {}^{12}CH_2 \\ | \\ {}^{12}COOH \end{array} \xrightarrow{k_{13}} {}^{12}CH_3\,{}^{12}COOH + {}^{13}CO_2$$

Der intramolekulare Isotopieeffekt dagegen wird gemessen durch das Verhältnis k_{12}/k_{13} bei dem gleichen Molekül:

$$\begin{array}{l} {}^{13}COOH \xrightarrow{k_{13}} {}^{12}CH_3\,{}^{12}COOH + {}^{13}CO_2 \\ | \\ {}^{12}CH_2 \\ | \\ {}^{12}COOH \xrightarrow{k_{12}} {}^{12}CH_3\,{}^{13}COOH + {}^{12}CO_2 \end{array} \tag{3.30}$$

Die Indizes 12 und 13 beziehen sich auf die Massenzahlen der Isotope.

Im Falle intramolekularer Isotopieeffekte ist die Übereinstimmung zwischen Theorie und Experiment im allgemeinen besser als im Falle intermolekularer Isotopieeffekte. Das liegt vor allen Dingen daran, daß im ersten Falle die Berechnung etwas einfacher ist. Nach BIGEL-

Tabelle 3.5.
Berechnete maximale kinetische Isotopieeffekte bei 25 °C

Isotope	k_1/k_2
H/D	18
H/T	60
$^{10}B/^{11}B$	1,3
$^{12}C/^{13}C$	1,25
$^{12}C/^{14}C$	1,50
$^{14}N/^{15}N$	1,14
$^{16}O/^{18}O$	1,19
$^{22}Na/^{23}Na$	1,03
$^{31}P/^{32}P$	1,02
$^{32}S/^{35}S$	1,05
$^{40}Ca/^{45}Ca$	1,08
$^{127}J/^{131}J$	1,02

Werte aus:
J. BIGELEISEN: Science [New York] **110** (1949) 14.

Tabelle 3.6.
Kinetische Isotopieeffekte für Gasreaktionen beim Ersatz von H durch D

Reaktion		Temperatur in °K	k_H/k_D
H + H	D + D	298	1,36
H + p-H_2	D + p-D_2	880	2,5
H + HCl	H + DCl	298	2,3
H + HCl	D + HCl	298	3
H_2 + Cl_2	D_2 + Cl_2	300	3
H_2 + Cl_2	HT + Cl_2	273	3,7
H_2 + Br_2	D_2 + Br_2	850	3,3
H_2 + J_2	D_2 + J_2	703	2,0
H_2 + O_2	D_2 + O_2	833	1,6
H_2 + C_2H_4	D_2 + C_2H_4	825	2,5

Werte aus:
K. B. WIBERG: Chem. Reviews **55** (1955) 713.

EISEN kann bei intramolekularen Isotopieeffekten von leichten Atomen (Wasserstoff) die Nullpunktsenergie vernachlässigt werden, und es resultiert die vereinfachte Beziehung

$$\frac{k'}{k} = S\left(\frac{\mu}{\mu'}\right)^{1/2}, \tag{3.31}$$

worin S einen Symmetriefaktor bedeutet. Unter diesen Bedingungen ist der Isotopieeffekt von der Temperatur unabhängig und kann verhältnismäßig leicht berechnet werden.

In Tab. 3.5. sind einige von BIGELEISEN berechnete maximale Isotopieeffekte zusammengestellt. Man erkennt aus dieser Tabelle, daß die Isotopieeffekte mit abnehmendem Massenverhältnis sehr rasch kleiner werden.

Messungen des kinetischen Isotopieeffekts wurden vor allen Dingen mit leichten Atomen ausgeführt, insbesondere mit Wasserstoff und

Tabelle 3.7.
Verhältnis der Geschwindigkeitskonstanten für die Säure-Base-Katalyse in H_2O und D_2O

Reaktion	Temperatur in °C	Katalysator	k_H/k_D
Säure-Katalyse			
Rohrzuckerinversion	25	H_3O^+	0,50
Mutarotation der Glucose	25	H_3O^+	1,37
Bromierung von Aceton	25	H_3O^+	0,5
Hydrolyse von			
Orthoameisensäureäthylester	18	H_3O^+	0,73
Essigsäuremethylester	15	H_3O^+	0,63
Essigsäureäthylester	15	H_3O^+	0,5
Ameisensäureäthylester	15	H_3O^+	0,45
Zersetzung von Diazoessigester	0	H_3O^+	0,35
Base-Katalyse			
Mutarotation der Glucose	25	H_2O	3,8
Bromierung von Aceton	25	CH_3COO^-	1,1
Acetylaceton	25	H_2O	1,9
Nitromethan	25	CH_3COO^-	1,15
Hydrolyse von			
Monochloressigsäure	45	OH^-	0,8
Essigsäureäthylester	15	OH^-	0,75
Acetamid	25	OH^-	1,10
Acetonitril	35	OH^-	0,8
Zersetzung von Nitramid	25	H_2O	5,3

Werte aus:
K. B. WIBERG: Chem. Reviews **55** (1955) 713.
O. REITZ in: Handbuch der Katalyse, hrsg. v. G. M. SCHWABE. Bd. 2: Katalyse in Lösungen, S. 272. Springer-Verlag, Wien 1940.

Tabelle 3.8.
Kinetische Isotopieeffekte bei verschiedenen Reaktionen

Reaktion	Temp. in °C	Verhältnis der Geschwindigkeitskonstanten gemessen	berechnet
Decarboxylierung der Essigsäure			
$CH_3{}^{14}COOH \rightarrow {}^{14}CO_2 + CH_4$	—	$k_{12}/k_{14} = 1{,}06$	—
Decarboxylierung der Mesitylencarbonsäure			
$(CH_3)_3C_6H_2{}^{13}COOH \rightarrow {}^{13}CO_2 + (CH_3)_3C_6H_3$	60	$k_{12}/k_{13} = 1{,}037$	1,041
$(CH_3)_3C_6H_2{}^{14}COOH \rightarrow {}^{14}CO_2 + (CH_3)_3C_6H_3$	60	$k_{12}/k_{14} = 1{,}101$	1,078
Decarboxylierung der Oxalsäure			
$COOH{}^{14}COOH \rightarrow {}^{14}CO_2 + CO + H_2O$	100	$k_{12}/k_{14} = 1{,}033$	—
Hydrolyse von Benzoesäureäthylester			
$C_6H_5{}^{14}COOC_2H_5 + OH^- \rightarrow C_6H_5{}^{14}COOH + C_2H_5O^-$	20	$k_{12}/k_{14} = 1{,}16$	1,15
Hydrolyse von Harnstoff			
$NH_2{}^{13}CONH_2 + H_2O \rightarrow 2\,NH_3 + {}^{13}CO_2$	100	$k_{12}/k_{13} = 1{,}055$	1,043
$NH_2{}^{14}CONH_2 + H_2O \rightarrow 2\,NH_3 + {}^{14}CO_2$	100	$k_{12}/k_{14} = 1{,}10$	1,08
Cannizzarosche Reaktion			
$2\,H^{14}CHO + OH^- \rightarrow H^{14}COO^- + {}^{14}CH_3OH$	60	$k_{12}/k_{14} = 1{,}00$	1,03
Zersetzung von Nickeltetracarbonyl			
$Ni({}^{14}CO)_4 \rightarrow Ni + 4\,{}^{14}CO$	30	$k_{12}/k_{14} = 1{,}022$	1,020
Zersetzung von Ammoniumnitrat			
$NH_4N^{18}O_3 \rightarrow N_2{}^{18}O + 2\,H_2{}^{18}O$	220	$k_{16}/k_{18} = 1{,}023$	1,026

Werte aus:

E. A. Evans, I. L. Huston: J. chem. Physics **19** (1951) 1214. A. A. Bothner-By, J. Bigeleisen: J. chem. Physics **19** (1951) 755. W. H. Stevens, J. M. Pepper, M. Lounsburg: J. chem. Physics **20** (1952) 196. R. B. Bernstein: J. physic. Chem. **56** (1952) 893 u. J. chem. Physics **22** (1954) 710. G. A. Ropp, V. F. Raaen: J. chem. Physics **20** (1952) 1823 u. **21** (1953) 1902. A. M. Downes, G. M. Harris: J. chem. Physics **20** (1952) 196. J. G. Lindsay, D. E. McElcheran, H. G. Thode: J. chem. Physics **17** (1949) 589. J. A. Schmitt, A. A. Myerson, F. Daniels: J. physic. Chem. **56** (1950) 917. L. Friedmann, J. Bigeleisen: J. chem. Physics **18** (1950) 1325. (Vgl. auch M. Haissinsky: Nuclear Chemistry and its Applications. Addison-Wesley Publ. Comp., London 1964, S. 256).

Kohlenstoff. Die Tabellen 3.6., 3.7. und 3.8. enthalten einige Versuchsergebnisse. In manchen Fällen konnten durch Messung des Isotopieeffekts auch Aussagen über den Reaktionsmechanismus gemacht werden. Aus diesem Grunde sind die kinetischen Isotopieeffekte von Bedeutung für die chemische Reaktionskinetik. Bei mittelschweren Elementen sind die Isotopieeffekte allerdings so klein, daß sie nur unter beträchtlichem experimentellem Aufwand mit hinreichender Genauigkeit gemessen werden können.

3.3. Gleichgewichtsisotopieeffekte

Ein chemisches Gleichgewicht, bei dem zwischen den Reaktionspartnern nur isotope Nuklide ausgetauscht werden, nennt man ein Isotopenaustauschgleichgewicht. Zunächst würde man erwarten, daß sich die Isotope dabei gleichmäßig auf die verschiedenen Reaktionspartner verteilen, d. h., daß die Gleichgewichtskonstante K solcher Isotopenaustauschreaktionen 1 beträgt. Tatsächlich findet man aber, daß die Gleichgewichtskonstante mehr oder weniger stark von dem Wert 1 abweicht, d. h., daß die Isotope im chemischen Gleichgewicht ungleichmäßig auf die Reaktionspartner verteilt sind. Dies bezeichnet man als Gleichgewichtsisotopieeffekt.

Ein praktisch wichtiges Beispiel für ein Isotopenaustauschgleichgewicht ist die Reaktion

$$\mathrm{HD(g.)} + \mathrm{H_2O(fl.)} \rightleftharpoons \mathrm{H_2(g.)} + \mathrm{HDO(fl.)}. \tag{3.32}$$

Dies ist eine heterogene Isotopenaustauschreaktion; der Austausch der Wasserstoffatome zwischen gasförmigem Wasserstoff und flüssigem Wasser wird durch Nickel oder Platin katalysiert. Die Gleichgewichtskonstante dieser Austauschreaktion,

$$K = \frac{[\mathrm{HDO}]\,[\mathrm{H_2}]}{[\mathrm{H_2O}]\,[\mathrm{HD}]}, \tag{3.33}$$

ist sehr stark von 1 verschieden (bei 80 °C: $K \approx 3$); d. h., das Deuterium wird im Wasser angereichert. Derartige Gleichgewichtsisotopieeffekte bei Isotopenaustauschgleichgewichten besitzen eine große Bedeutung für die Isotopentrennung (vgl. Abschn. 4.11.).

Allgemein lautet die Gleichung für ein Isotopenaustauschgleichgewicht

$$\mathrm{AX} + \mathrm{BX'} \rightleftharpoons \mathrm{AX'} + \mathrm{BX} \tag{3.34}$$

Chemisch tritt bei einer solchen Reaktion keine Änderung ein. Für die thermodynamischen Größen gilt: $\Delta H \approx 0$, $\Delta S \neq 0$, $\Delta G \approx -T\Delta S$. Die Gleichgewichtskonstante ist gegeben durch

$$K = \frac{[AX'][BX]}{[AX][BX']}. \tag{3.35}$$

Häufig benutzt man zur Charakterisierung des Isotopenaustausches den Austauschkoeffizienten (Verteilungskoeffizienten)

$$\alpha = \left(\frac{[X']}{[X]}\right)_{AX} : \left(\frac{[X']}{[X]}\right)_{BX}. \tag{3.36}$$

Bei einfachen Isotopenaustauschreaktionen (Gl. (3.34)) ist $\alpha = K$; wenn die Moleküle dagegen mehrere austauschfähige Atome oder Ionen enthalten, ist $\alpha \neq K$.

Die Gleichgewichtsisotopieeffekte, d. h. die Abweichungen vom Wert $\alpha=1$, müssen auf Unterschieden des chemischen Potentials der gleichartigen Verbindungen beruhen, die isotope Nuklide enthalten. Die Gleichgewichtskonstanten können mit Hilfe der statistischen Thermodynamik berechnet werden. Die Rechnung ist in diesem Falle (Isotopenaustauschgleichgewichte) verhältnismäßig einfach, weil einige Parameter herausfallen, die von der Massenzahl unabhängig sind. So kann man die Kraftfelder, die Potentialfunktionen und die geometrischen Abmessungen von gleichartigen Molekülen, die isotope Nuklide enthalten, als gleich ansehen; es genügt, die Größen zu berücksichtigen, die direkt von der Massenzahl abhängen (Trägheitsmomente, Schwingungsfrequenzen, Nullpunktsenergien).

Die statistische Thermodynamik liefert für die Gleichgewichtskonstante K des obigen Isotopenaustauschgleichgewichts den Ausdruck

$$K = \frac{Z(AX')\,Z(BX)}{Z(AX)\,Z(BX')}. \tag{3.37}$$

Die Zustandssummen Z treten dabei an die Stellen der Konzentrationen in Gleichung (3.35). Sie geben die Wahrscheinlichkeit dafür an, daß sich die Moleküle in einem bestimmten Energiezustand befinden, und sind gegeben durch das Produkt der einzelnen Faktoren, die den

Energiezustand des Moleküls bestimmen (Translation, Rotation, Schwingung, Elektronenenergie und Kernspin):

$$Z = Z_{\text{trans}} Z_{\text{rot}} Z_{\text{schwing}} Z_{\text{el}} Z_{\text{sp}} = \Sigma g_i e^{-E_i/k_B T} \tag{3.38}$$

g_i ist das statistische Gewicht eines Zustandes mit der Energie E_i und gibt die Zahl der Möglichkeiten an, nach denen der betreffende Energiezustand durch verschiedene Kombinationen der Quantenzahlen realisiert werden kann. Die Werte von Z können aus spektroskopischen Daten ermittelt werden und sind in vielen Fällen angegeben, vor allen Dingen für leichte Moleküle.

Vergleicht man zwei Moleküle, die sich nur dadurch unterscheiden, daß sie isotope Nuklide enthalten, so vereinfachen sich die Verhältnisse sehr. Es gehen dann praktisch nur noch die Unterschiede in der Schwingungs- und Rotationsenergie ein (vgl. Abschn. 3.1.). Für zweiatomige Moleküle beträgt das Verhältnis der Zustandssummen

$$\frac{Z'}{Z} = \frac{S}{S'} \left(\frac{\mathrm{M}'}{\mathrm{M}}\right)^{3/2} \left[\frac{I'(1-e^{-u})\,e^{-u'/2}}{I(1-e^{-u'})\,e^{-u/2}}\right]. \tag{3.39}$$

M ist die Molmasse, I das Trägheitsmoment und S die Symmetriezahl. Zur Abkürzung ist $2\,E_0/k_B T = u$ gesetzt; E_0 ist die Nullpunktsenergie (Gl. (3.7)). Die Symmetriezahl ist die Zahl der nicht unterscheidbaren Lagen, die durch Rotation des Moleküls um alle Symmetrieachsen erreicht werden können. So ist für H_2: $S = 2$, für HD: $S = 1$. Für mehratomige nicht-lineare Moleküle ergibt sich

$$\frac{Z'}{Z} = \frac{S}{S'} \left(\frac{\mathrm{M}'}{\mathrm{M}}\right)^{3/2} \left(\frac{A'B'C'}{ABC}\right)^{1/2} \prod \left[\frac{(1-e^{-u})\,e^{-u'/2}}{(1-e^{-u'})\,e^{-u/2}}\right]. \tag{3.40}$$

Hier steht auf der rechten Seite das Produkt der u-Funktionen für die $3n$–6 Schwingungen des n-atomigen Moleküls. A, B und C sind die Hauptträgheitsmomente. Diese sind in den meisten Fällen nicht bekannt; außerdem fehlen für mehratomige Moleküle auch häufig die spektroskopischen Daten. In diesen Fällen ist die Produktregel von Teller und Redlich (1935) nützlich; danach ist

$$\left(\frac{\mathrm{M}'}{\mathrm{M}}\right)^{3/2} \left(\frac{A'B'C'}{ABC}\right)^{1/2} = \prod \left(\frac{u'}{u}\right). \tag{3.41}$$

Damit vereinfacht sich die Gleichung (3.40):

$$\frac{Z'}{Z} = \frac{S}{S'} \prod \left[\frac{u'(1-e^{-u})\, e^{-u'/2}}{u(1-e^{-u'})\, e^{-u/2}} \right]. \tag{3.42}$$

In dieser Gleichung steht auf der rechten Seite nur noch der Symmetriefaktor (S-Term) und der Faktor für die freie Energie (u-Term). Sie ist sowohl für zwei- als auch für mehratomige Moleküle anwendbar. Zur Vereinfachung setzt man $u' = u + \Delta u$ und erhält durch Reihenentwicklung

$$\frac{Z'}{Z} = \frac{S}{S'} e^{-\Sigma G(u) \Delta u} \tag{3.43}$$

mit

$$G(u) = \frac{1}{2} - \frac{1}{u} + \frac{1}{e^{u} - 1}. \tag{3.44}$$

Die Werte von $G(u)$ sind tabelliert (BIGELEISEN und MAYER 1947); sie liegen zwischen 0 ($u=0$) und 0,5 ($u=\infty$). Mit steigender Temperatur gehen die Werte von u gegen 0 und der u-Term gegen 1, so daß die Gleichgewichtskonstante nur noch von dem Verhältnis der Symmetriezahlen abhängt. So betragen für das Isotopenaustauschgleichgewicht

$$H_2 + D_2 \rightleftharpoons 2\,HD \tag{3.45}$$

die Symmetriezahlen S: 2 2 1.
Daraus folgt für den Grenzwert der Gleichgewichtskonstanten bei hoher Temperatur

$$K_0 = \frac{Z(HD)^2}{Z(H_2)\, Z(D_2)} = \frac{S_{H_2} S_{D_2}}{S_{HD}^2} = 4. \tag{3.46}$$

Bei diesem Grenzwert K_0 führt die Isotopenaustauschreaktion nicht mehr zu einer Trennung der Isotope. Daher dient der Quotient K/K_0 als Maß für den Trenneffekt bei Isotopenaustauschreaktionen.

In Tab. 3.9. sind einige Gleichgewichtskonstanten für Isotopenaustauschreaktionen zusammengestellt. Die Übereinstimmung zwischen den berechneten und den experimentellen Werten ist gut.

Tabelle 3.9.
Gleichgewichtskonstanten von Austauschreaktionen

Reaktionen	Temp. in °C	K exp.	K berechn.
$H_2 + D_2 \rightleftharpoons 2\,HD$	25	3,28	3,33
$H_2 + T_2 \rightleftharpoons 2\,HT$	25	2,5 – 2,9	2,56
$H_2O_{(g.)} + D_2O_{(g.)} \rightleftharpoons 2\,HDO_{(g.)}$	25	—	3,27
$H_2O_{(g.)} + T_2O_{(g.)} \rightleftharpoons 2\,HTO_{(g.)}$	25	—	3,42
$HD_{(g.)} + H_2O_{(g.)} \rightleftharpoons HDO_{(g.)} + H_{2(g.)}$	25	3,2	3,57
$HT_{(g.)} + H_2O_{(g.)} \rightleftharpoons HTO_{(g.)} + H_{2(g.)}$	25	6,26	6,19
$H_{2(g.)} + DCl_{(g.)} \rightleftharpoons HCl_{(g.)} + HD_{(g.)}$	17	1,45	1,53
$PH_2D_{(g.)} + H_2O_{(g.)} \rightleftharpoons PH_{3(g.)} + HDO_{(g.)}$	25	1,52	1,46
$^{12}CO_2 + {}^{13}CO \rightleftharpoons {}^{13}CO_2 + {}^{12}CO$	25	—	1,086
$^{12}CO_{3(aq.)}^{2-} + {}^{13}CO_{2(g.)} \rightleftharpoons {}^{13}CO_{3(aq.)}^{2-} + {}^{12}CO_{2(g.)}$	0	1,017	1,016
$^{12}CO_{3(aq.)}^{2-} + {}^{14}CO_{2(g.)} \rightleftharpoons {}^{14}CO_{3(aq.)}^{2-} + {}^{12}CO_{2(g.)}$	0	—	1,024
$H^{12}CN_{(g.)} + {}^{13}CN^-_{(aq.)} \rightleftharpoons H^{13}CN_{(g.)} + {}^{12}CN^-_{(aq.)}$	18	1,026	1,030
$^{15}NH_{3(g.)} + {}^{14}NH^+_{4(aq.)} \rightleftharpoons {}^{14}NH_{3(g.)} + {}^{15}NH^+_{4(aq.)}$	25	1,034	1,035
$^{15}NO_2^- + {}^{14}NO_3^- \rightleftharpoons {}^{14}NO_2^- + {}^{15}NO_3^-$	25	—	1,09
$\frac{1}{2}C^{16}O_2 + H_2{}^{18}O_{(aq.)} \rightleftharpoons \frac{1}{2}C^{18}O_2 + H_2{}^{16}O_{(aq.)}$	0	1,046	1,044
$^{34}SO_{2(g.)} + H^{32}SO^-_{3(aq.)} \rightleftharpoons {}^{32}SO_{2(g.)} + H^{34}SO^-_{3(aq.)}$	25	—	1,019
$^{36}SO_{2(g.)} + H^{32}SO^-_{3(aq.)} \rightleftharpoons {}^{32}SO_{2(g.)} + H^{36}SO^-_{3(aq.)}$	25	1,043	1,039
$^{37}ClO_3^- + {}^{35}ClO_4^- \rightleftharpoons {}^{35}ClO_3^- + {}^{37}ClO_4^-$	25	—	1,035
$^{35}Cl^{37}Cl_{(g.)} + {}^{35}ClO^-_{3(aq.)} \rightleftharpoons {}^{35}Cl^{35}Cl_{(g.)} + {}^{37}ClO^-_{3(aq.)}$	25	—	1,077
$^{79}Br^{81}Br + {}^{79}BrO_3^- \rightleftharpoons {}^{79}Br^{79}Br + {}^{81}BrO_3^-$	25	—	1,007
$^{127}J^{129}J + {}^{127}JO_3^- \rightleftharpoons {}^{127}J^{127}J + {}^{129}JO_3^-$	25	—	1,0028
$^{127}J^{131}J + {}^{127}JO_3^- \rightleftharpoons {}^{127}J^{127}J + {}^{131}JO_3^-$	25	—	1,005

Werte aus:
M. HAISSINSKY: Nuclear Chemistry and its Applications. Addison-Wesley Publ. Comp., London 1964, S. 250.
H. ZEISE: Thermodynamik, Bd. III/1. S. Hirzel Verlag, Leipzig 1954. H. C. UREY: J. chem. Soc. [London] 1947, 561.

Literatur zu Kapitel 3

1. S. GLASSTONE, K. J. LAIDLER, H. EYRING: The Theory of Rate Processes. McGraw-Hill Book Comp., New York 1941.
2. J. BIGELEISEN, M. WOLFSBERG: Isotope Effects in Chemical Kinetics. Advances in Chemical Physics, Bd. 1. Hrsg. I. PRIGOGINE. Interscience Publ., London 1958.
3. A. E. BRODSKY: Isotopenchemie. Akademie-Verlag, Berlin 1961.
4. S. S. ROGINSKI: Theoretische Grundlagen der Isotopenchemie. Deutscher Verlag der Wissenschaften, Berlin 1962.
5. L. MELANDER: Isotope Effects on Reaction Rates. The Ronald Press Comp., New York 1960.
6. M. HAISSINSKY: Nuclear Chemistry and its Applications. Addison-Wesley Publ. Comp., Reading 1964, Kap. 9. (Franz. Originalausgabe: La Chimie Nucléaire et ses Applications. Masson et Cie., Paris 1957).
7. V. GOLD: Advances in Physical Organic Chemistry. Academic Press, New York. Vol. 1 – 4 (1963 – 1966).
8. A. J. SHATENSHTEIN: Isotopic Exchange and the Replacement of Hydrogen in Organic Compounds. Consult. Bureau Enterpr., New York 1962.
9. Proceedings of the Symposium on Isotope and Mass Effects in Chemistry and Biology, in Wien 1963. Hrsg. International Union of Pure and Applied Chemistry, I.U.P.A.C. Butterworth, London 1964.

Übungen zu Kapitel 3

1. Welchen Wert berechnet man für das Dampfdruckverhältnis von D_2O und H_2O bei 20 °C und bei 100 °C?

2. Wie groß ist das Verhältnis der Schwingungsfrequenzen in H_2 und HD bzw. in $H^{35}Cl$ und $H^{37}Cl$?

3. Man berechne näherungsweise das Verhältnis der Geschwindigkeitskonstanten bei 25 °C für die Isotopenaustauschreaktionen

$$H^{35}Cl + D_2 \overset{k_1}{\rightleftharpoons} D^{35}Cl + HD$$

$$H^{37}Cl + D_2 \overset{k_1'}{\rightleftharpoons} D^{37}Cl + HD$$

unter der Annahme, daß die Bindungen im Übergangszustand stark gelockert sind.

4. Man berechne näherungsweise die Gleichgewichtskonstante bei 25 °C für die beiden in der dritten Übung angegebenen Reaktionen. Die Trägheitsmomente betragen:

für HD	$0{,}6127 \cdot 10^{-40}$ g cm^2
für D_2	$0{,}9198 \cdot 10^{-40}$ g cm^2
für $H^{35}Cl$	$2{,}6421 \cdot 10^{-40}$ g cm^2
für $H^{37}Cl$	$2{,}6477 \cdot 10^{-40}$ g cm^2
für $D^{35}Cl$	$5{,}1371 \cdot 10^{-40}$ g cm^2
für $D^{37}Cl$	$5{,}1521 \cdot 10^{-40}$ g cm^2

4. Isotopentrennung

4.1. Bedeutung der Isotopentrennung

Die verschiedenen Kerneigenschaften von Isotopen sind von großer praktischer Bedeutung. Dies sei an einigen Beispielen erläutert: Das U–235, welches mit einer Häufigkeit von 0,72% im natürlichen Uran vorkommt, wird im Gegensatz zum U–238 mit hoher Ausbeute durch thermische Neutronen gespalten; d. h. U–235 ist ein Kernbrennstoff, U–238 nicht. (Thermische Neutronen sind solche, deren Energien normalen Temperaturen entsprechen, $E \ll 1$ eV). Der Aufbau und der Betrieb eines Kernreaktors hängt deshalb entscheidend von dem Gehalt des verwendeten Urans an U–235 ab.

D_2O hat einen sehr viel kleineren Einfangquerschnitt für thermische Neutronen als H_2O ($\sigma_D = 0{,}00057$ b, $\sigma_H = 0{,}33$ b). D_2O ist deshalb als Kühlmittel und Bremsmittel für Neutronen (Moderator) sehr viel besser geeignet als H_2O. Aus diesem Grunde erzeugt man für den Betrieb von Reaktoren D_2O in technischem Maßstab tonnenweise.

Das natürliche Lithium besteht zu 7,4% aus Li–6 und zu 92,6% aus Li–7. Diese Isotope zeigen ebenfalls sehr verschiedene Kerneigenschaften. Li–6 besitzt einen sehr großen Einfangquerschnitt für thermische Neutronen ($\sigma = 953$ b), wobei mit hoher Ausbeute Tritium entsteht, das für die Durchführung von Fusionsreaktionen sehr wichtig ist:

$$^{6}_{3}\mathrm{Li} + {}^{1}_{0}\mathrm{n} \longrightarrow {}^{3}_{1}\mathrm{H} + {}^{4}_{2}\mathrm{He} \text{ (Erzeugung von Tritium);} \tag{4.1}$$

$$^{3}_{1}\mathrm{H} + {}^{2}_{1}\mathrm{H} \longrightarrow {}^{4}_{2}\mathrm{He} + {}^{1}_{0}\mathrm{n} \text{ (Fusion von Tritium und Deuterium).} \tag{4.2}$$

Beide Reaktionen laufen ab, wenn man LiD (Lithiumdeuterid) verwendet. Damit ist die Grundlage für die Entwicklung der Wasserstoffbombe gegeben. Das Li–7 besitzt im Gegensatz zum Li–6 einen sehr kleinen Einfangquerschnitt für thermische Neutronen ($\sigma = 0{,}037$ b).

Aus diesem Grunde und wegen seiner günstigen thermischen Eigenschaften ist Li–7 als Kühlmittel für Hochleistungsreaktoren geeignet.

Thermische Neutronen werden von N–15 ($\sigma = 0{,}000024$ b) in sehr viel geringerem Umfang absorbiert als von N–14 ($\sigma = 1{,}8$ b). Wegen des hohen Einfangquerschnitts des N–14 verwendet man in homogenen Reaktoren an Stelle von Uranylnitrat gelöstes Uranylsulfat, obgleich dieses Salz schwer löslich ist. Will man das günstigere Uranylnitrat einsetzen, so muß man zunächst eine Anreicherung von N–15 durchführen.

In reiner Form abgetrennte oder angereicherte inaktive Nuklide haben als Indikatoren bei kinetischen Untersuchungen große Bedeutung, insbesondere dann, wenn geeignete radioaktive Isotope nicht existieren oder nicht anwendbar sind (z. B. O–18, C–13 u. a.). Der Anwendung in größerem Umfang stehen lediglich die verhältnismäßig hohen Kosten der Isotopentrennung entgegen.

Die Isotopentrennung ist eine der schwierigsten, aber auch eine der interessantesten Aufgaben der präparativen Chemie. Die Abtrennung und Reindarstellung von U–235 und von D_2O sind bereits wichtige Bestandteile der Großtechnik geworden, die einen umfangreichen industriellen Aufwand erfordern.

4.2. Trennfaktor und Trennkaskade

Die Methoden der Isotopentrennung basieren auf den in Kapitel 3 besprochenen Unterschieden im physikalischen und chemischen Verhalten der Isotope. Nur durch wiederholte Ausnutzung des Einzeleffekts unter sorgfältig ausgewählten Bedingungen wird die gewünschte Anreicherung eines bestimmten Isotops erzielt. Die Aufgabe einer Trennoperation besteht darin, den Molenbruch x_1 eines Isotops auf den Molenbruch x_1' zu erhöhen. Die charakteristische Größe einer solchen einzelnen Trennoperation ist der (elementare) Trennfaktor α. Dieser ist gegeben durch den Quotienten

$$\alpha = \frac{x_1'}{1 - x_1'} \Big/ \frac{x_1}{1 - x_1} = \frac{x_1'(1 - x_1)}{x_1(1 - x_1')}. \tag{4.3}$$

In vielen praktischen Fällen kann man, wenn der Gehalt der anzureichernden Komponente klein ist, die folgende Näherungsformel benutzen:

$$\alpha = \frac{x_1'}{x_1}. \tag{4.4}$$

Die Größe

$$\alpha - 1 = \frac{x_1' - x_1}{x_1(1 - x_1')} \tag{4.5}$$

wird Anreicherungsfaktor genannt. Da die Trennfaktoren im allgemeinen nur wenig größer als 1 sind, muß man mehrere Trennoperationen stufenweise hintereinanderschalten, um eine brauchbare Isotopentrennung zu erzielen. Verwendet man s Stufen, so erreicht man einen Gesamttrennfaktor

$$A = \alpha^S, \tag{4.6}$$

der auch als Gesamtanreicherung bezeichnet wird.

Am zweckmäßigsten baut man Trenneinheiten gleicher Größe, die nebeneinander und hintereinander geschaltet werden (vgl. Abb. (4–1)). Da der Stoffdurchsatz mit wachsender Anreicherung geringer wird, muß man in den ersten Stufen viele Trenneinheiten nebeneinanderschalten, in den letzten Stufen nur noch wenige. Dadurch ergibt sich eine kaskadenförmige Anordnung der Trenneinheiten (Trennkaskade).

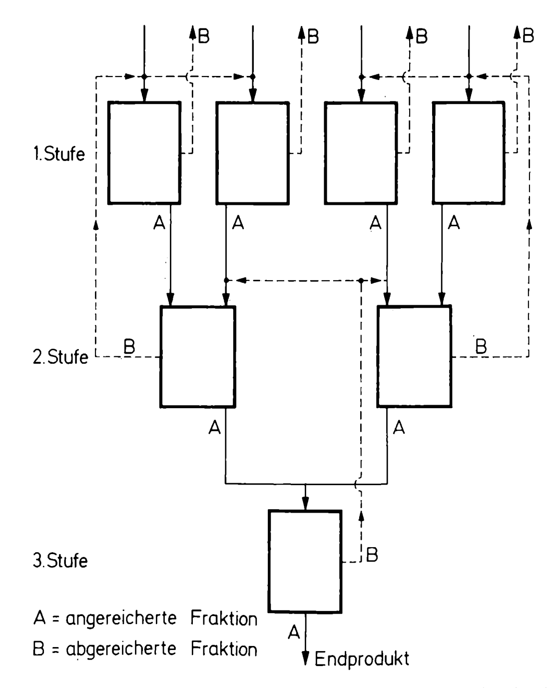


Abb. (4–1) Anordnung mehrerer Trenneinheiten zu einer Trennkaskade (schematisch).

Die Gesamtheit der Isotopentrennverfahren kann man einteilen in solche Verfahren, bei denen die physikalischen Unterschiede der Isotope ausgenutzt werden (physikalische Trennverfahren), und solche, bei denen die chemischen Unterschiede im Vordergrund stehen (chemische Trennverfahren). Im folgenden werden zuerst die physikalischen, dann die chemischen Verfahren besprochen.

4.3. Gasdiffusion

Die Diffusionsgeschwindigkeit von Gasmolekülen durch eine Membran ist umgekehrt proportional der Quadratwurzel aus ihrem Molekulargewicht:

$$D \sim \frac{1}{\sqrt{\mathrm{M}}}. \tag{4.7}$$

Der Trennfaktor, der in einer Diffusionsanlage maximal erreicht werden kann, beträgt

$$\alpha_{\max} = \sqrt{\frac{\mathrm{M}_2}{\mathrm{M}_1}} \qquad (\mathrm{M}_2 > \mathrm{M}_1). \tag{4.8}$$

Voraussetzung für die Anwendbarkeit dieser Gleichung ist, daß die mittlere freie Weglänge der Moleküle größer ist als der Porendurchmesser der Membran; das bedeutet, daß bei kleinen Drucken gearbeitet werden muß.

Die Methode der Gasdiffusion wurde erstmals im Jahre 1932 von HERTZ für die Trennung der Neonisotope angewendet. Im zweiten Weltkrieg bauten die USA eine Großanlage zur Trennung der Uranisotope auf. Weitere Anlagen dieser Art befinden sich in den UdSSR und in Frankreich. Dabei wird das Uran in Form des leicht flüchtigen Uranhexafluorids (Sublimationspunkt 56 °C) eingesetzt. Aus den Molekulargewichten des $^{235}UF_6$ (M = 349) und des $^{238}UF_6$ (M = 352) errechnet sich der maximale Trennfaktor einer Trennstufe zu $\alpha_{max} =$ $= 1{,}0043$. Daraus ersieht man, daß sehr viele Trennstufen hintereinandergeschaltet werden müssen, um eine Gesamtanreicherung des U-235 auf 90% zu erhalten, wie sie für viele Reaktoren benötigt wird. Dementsprechend sind diese Anlagen dimensioniert, die den Umfang sehr großer Fabriken besitzen und mehrere Hektar Bodenfläche beanspruchen.

4.4. Thermodiffusion

Bei der Thermodiffusion arbeitet man in einem Temperaturgefälle, das zwischen einer heißen und einer kalten Wand aufrechterhalten wird. Der schwerere Bestandteil reichert sich im kälteren Gebiet an. Bei Verwendung eines längeren Rohres wird der Effekt der Thermodiffusion durch die Konvektionsströmung verstärkt. Dabei erzeugt man im allgemeinen das Temperaturgefälle durch einen in der Achse des Rohres befindlichen Draht, während die Außenwand durch Wasser gekühlt werden kann (Abb. (4–2)). Diese Anordnung ist als Trennrohr von

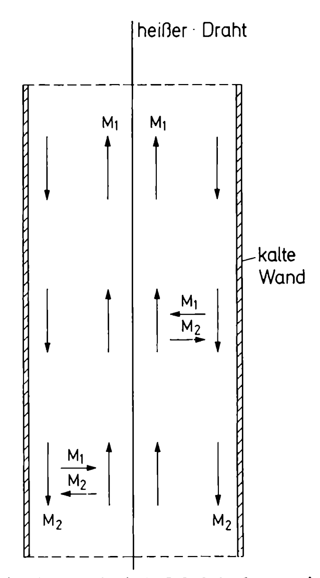


Abb. (4–2) Trennrohr (Ausschnitt), Molekulargewicht $M_2 > M_1$.

Clusius und Dickel seit 1939 bekannt und wird für die Trennung von Gasgemischen verwendet. Zwischen dem heißen und dem kalten Bereich besteht eine Thermodiffusion. Außerdem strömt die Substanz durch Konvektion an der heißen Wand nach oben und an der kalten Wand nach unten. Die schwerere Komponente reichert sich somit unten im Trennrohr an und die leichtere Komponente oben. Wichtig ist, daß die Geschwindigkeit der Konvektionsströmung mit der des Thermodiffusionsstromes vergleichbar ist. Das bedeutet, daß der Querschnitt der Rohre begrenzt ist (für Gastrennungen etwa 0,5 bis 0,7 cm).

Die theoretische Behandlung eines Trennrohres kann in ähnlicher Weise erfolgen wie die einer Füllkörperkolonne. Die Gesamtanrei-

cherung ist gegeben durch den elementaren Trennfaktor und die Zahl der „theoretischen Böden" des Trennrohres. Die Berechnung des Trennfaktors α ist kompliziert. Näherungsweise gilt

$$\ln \alpha = R_{\mathrm{T}} \frac{105}{118} \frac{\mathrm{M}_2 - \mathrm{M}_1}{\mathrm{M}_2 + \mathrm{M}_1} \ln \frac{T_2}{T_1} . \quad (4.9)$$

Der Thermodiffusionsfaktor R_{T} hängt von der Gasart ab und schwankt zwischen 0 und 0,75. Die Höhe eines theoretischen Bodens beträgt etwa 2 cm. Der stationäre Zustand eines Trennrohres ist erreicht, wenn die Rückdiffusion infolge des Konzentrationsgefälles ebenso groß ist wie die Thermodiffusion.

Im allgemeinen liefern Trennrohre auch bei einfacher Konstruktion recht gute Trennungen. Sie können nicht nur für die Trennung leichter Moleküle, sondern auch für mittelschwere und schwere Moleküle verwendet werden. Z. B. kann man vom unteren Ende eines 2 m langen mit Luft gefüllten Rohres nach einigen Stunden etwa 70%igen Sauerstoff abnehmen. Mehrere Trennrohre lassen sich leicht zu einer wirksamen Trennanlage hintereinanderschalten.

Die Thermodiffusion im Trennrohr hat hauptsächlich als Laboratoriumsmethode für die Isotopentrennung von Gasen Bedeutung gewonnen. CLUSIUS konnte mit Hilfe des Trennrohrs die Neonisotope in reiner Form darstellen und viele ^{13}C-Verbindungen, z. B. $^{13}CH_4$, gewinnen. Für Trennungen in der flüssigen Phase ist die Thermodiffusion weniger wirksam und deshalb von weit geringerem Interesse. Dies liegt vor allen Dingen daran, daß der Abstand zwischen der kalten und der heißen Wand auf etwa 0,1 mm reduziert werden müßte, um in Flüssigkeiten günstige Trenneffekte zu erzielen. Im zweiten Weltkrieg wurde das Verfahren auch auf flüssiges UF_6 angewandt, wegen seiner Unwirtschaftlichkeit aber wieder aufgegeben. Für spezielle Trennaufgaben besitzt die Anwendung der Thermodiffusion auf flüssige Phasen allerdings Vorteile.

4.5. Druckdiffusion

Dieses Verfahren wurde in Deutschland vor allen Dingen von BECKER (Karlsruhe) entwickelt. Das gasförmige Isotopengemisch tritt aus einer Düse mit Schallgeschwindigkeit in einen evakuierten Raum aus (Abb. (4–3)). Durch die Zusammenstöße der Moleküle in dem Gasstrahl werden bevorzugt die leichteren Moleküle aus ihrer Richtung

abgelenkt; sie reichern sich deshalb im Mantel des Gasstrahles an und werden durch eine Blende abgestreift. So wird eine partielle Trennung der schwereren Komponente von der leichteren Komponente erreicht.

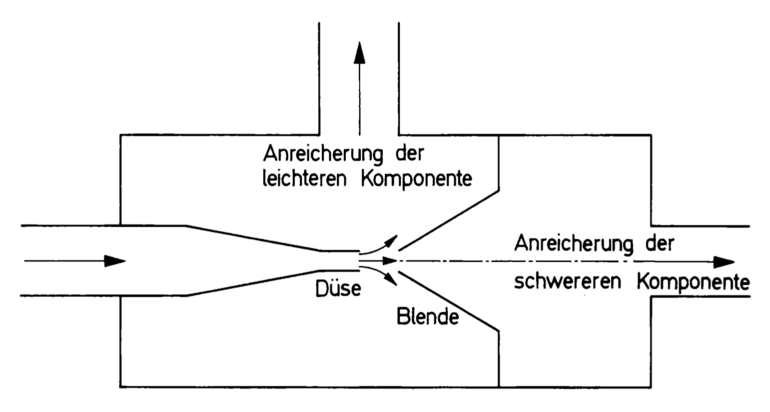


Abb. (4–3) Druckdiffusion (Trenndüse).

Diese Anordnung wird als Trenndüse bezeichnet. Der wesentliche Nachteil des Verfahrens besteht darin, daß bei sehr niedrigem Druck gearbeitet werden muß. Dementsprechend ist auch der Durchsatz bei verhältnismäßig großem Volumen sehr gering.

4.6. Elektromagnetische Trennung

Das Prinzip der elektromagnetischen Trennung ist das gleiche wie im Massenspektrometer (Abb. (4–4)). Der aus der Ionenquelle austretende Ionenstrom wird im elektrischen Feld beschleunigt und im magnetischen Feld abgelenkt. Hier beschreiben die Ionen eine Kreisbahn mit dem Radius

$$r = \frac{1}{B} \sqrt{\frac{2mU}{Z \cdot e}}. \qquad (4.10)$$

B ist die Induktionsflußdichte oder magnetische Kraftflußdichte im Magnetfeld von der Feldstärke H $(B = \mu_0 \cdot H)$, m die Masse der Ionen, $Z \cdot e$ ihre Ladung und U die Beschleunigungsspannung. Im Massenspektrometer kann man Mikrogramm-Mengen von Substanzen trennen. Beim Einsatz größerer Mengen müssen die Schwierigkeiten überwunden werden, die sich aus den hohen Ionenströmen und den Elektronenraumladungen ergeben.

Die Trennung größerer Substanzmengen gelang zuerst im Jahre 1944 im sogenannten Calutron („California University Cyclotron"), das dann zu den heute gebräuchlichen Separatoren weiterentwickelt wurde. In diesen Maschinen werden Milligramm-Mengen von Isotopen der verschiedensten Elemente innerhalb von Stunden getrennt. Die Isotope gelangen durch Schlitze auf die einzelnen Auffänger. Die Anordnung erinnert an ein System von Briefkästen.

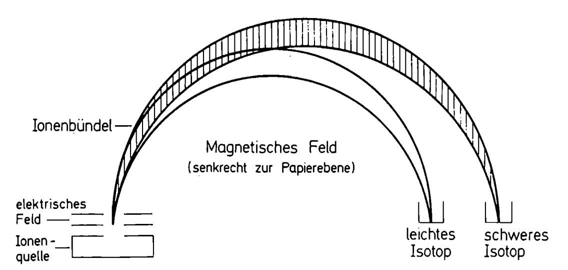


Abb. (4–4) Prinzip der elektromagnetischen Isotopentrennung.

Durch elektromagnetische Separatoren getrennte stabile Nuklide vieler Elemente sind im Handel erhältlich, wegen des großen Aufwandes allerdings relativ teuer. Besondere Bedeutung besitzen die Separatoren für schwere Elemente, in denen z. B. die Isotope des Plutoniums getrennt werden; das Pu–242 kann dann für die Darstellung von Transplutoniumelementen Verwendung finden. Solche Separatoren stehen wegen der hohen Radiotoxizität des Plutoniums in dicht abgeschlossenen Räumen.

4.7. Ultrazentrifuge

Das Prinzip der Ultrazentrifuge wird am besten an Hand der barometrischen Höhenformel verständlich. Danach beträgt das Verhältnis der Partialdrucke von zwei Gasen in einer Höhe h

$$\frac{p_1(h)}{p_2(h)} = \frac{p_1(0)}{p_2(0)} e^{-(\mathrm{M}_1-\mathrm{M}_2)\frac{gh}{RT}} . \qquad (4.11)$$

M_1 und M_2 sind die Molekulargewichte, g ist die Erdbeschleunigung und R die Gaskonstante. Analog gilt für eine Zentrifuge mit dem Radius r und der Winkelgeschwindigkeit ω

$$\frac{p_1(r)}{p_2(r)} = \frac{p_1(0)}{p_2(0)} e^{-(\mathrm{M}_1-\mathrm{M}_2)\frac{\omega^2 r^2}{2RT}} . \qquad (4.12)$$

Mit Hilfe einer Ultrazentrifuge vom Radius r (etwa 20 cm) und einer hohen Winkelgeschwindigkeit ω ist somit ebenfalls eine Isotopentrennung möglich. Die Besonderheit der Ultrazentrifuge besteht darin, daß hier die Differenz der Massen eingeht. Dieses Verfahren ist deshalb bei großen Massenzahlen besonders vorteilhaft. Für eine Massendifferenz $M_2 - M_1 = 1$, $\omega r = 300$ m/s und 25 °C berechnet man

$$\alpha_{max} = \frac{p_1(r)}{p_2(r)} \Big/ \frac{p_1(0)}{p_2(0)} = 1{,}0183. \tag{4.13}$$

Die Hauptschwierigkeiten bei der Verwendung der Ultrazentrifuge sind technischer Natur; denn man muß im kontinuierlichen Betrieb in der schnell rotierenden Zentrifuge laufend an verschiedenen Stellen Gas zuführen und abnehmen.

Die Verwendung der Ultrazentrifuge zur Isotopentrennung wurde 1939 von BEAMS vorgeschlagen; in Deutschland beschäftigt sich GROTH mit der Entwicklung dieser Methode. Die besondere Eignung für die Trennung der Isotope schwerer Elemente wurde bereits hervorgehoben. Die meisten Vorteile bietet die Methode dann, wenn eine mit dem leichten Isotop angereicherte Fraktion gewonnen werden soll. Die zu trennende Substanz kann dann als leicht flüchtige Verbindung axial eingeführt werden und verdampft dort, während das gewünschte Produkt an der Peripherie abgenommen wird.

4.8. Destillation

Die Isotopentrennung durch Destillation beruht auf den Unterschieden in den Dampfdrucken. Durch das Dampfdruckverhältnis ist der maximal erreichbare Trennfaktor gegeben. Für Wasser erhält man beispielsweise

$$\alpha_{max} = \frac{p_{H_2O}}{p_{HDO}} = 1{,}076\,(20\,°C). \tag{4.14}$$

(Der Unterschied im Siedepunkt von H_2O und D_2O beträgt 1,4 grad, vgl. Tab. 3.2.). Um die kleinen Unterschiede im Dampfdruck auszunutzen, sind wirksame Spezialkolonnen mit einer großen Bodenzahl erforderlich.

Für die Trennung einer idealen Mischung auf Grund der unterschiedlichen Flüchtigkeit ihrer Komponenten gilt die Rayleigh-Formel

$$\frac{x_1}{x_1^0}\left(\frac{1-x_1^0}{1-x_1}\right)^{1/\alpha} = \left(\frac{V_0}{V}\right)^{\frac{\alpha-1}{\alpha}}. \tag{4.15}$$

x_1^0 ist der Molenbruch der schwerer flüchtigen Komponente in der Mischung zu Beginn der Trennoperation, x_1 der Molenbruch dieser Komponente nach Einengen der Mischung vom Volumen V_0 auf das Volumen V; α ist der Trennfaktor. Ideales Verhalten — d. h. Konstanz des Trennfaktors α im gesamten Konzentrationsbereich — kann bei Mischungen, die sich nur durch ihre isotope Zusammensetzung unterscheiden, vorausgesetzt werden.

Aus Gl. (4.15) ist erkennbar, daß eine völlige Abtrennung der schwereren Komponente ($x_1 \to 1$) durch eine einfache Verdampfung nur asymptotisch ($V_0/V \to \infty$) erreicht werden kann. Um beispielsweise durch einfache Verdampfung bei einem Trennfaktor $\alpha = 1{,}006$ 1 Milligramm Wasser mit dem doppelten Gehalt an O–18 zu erhalten (Anreicherung des O–18 von $x_1^0 = 0{,}002$ auf $x_1 = 0{,}004$), müßte man 10^{34} Tonnen Wasser auf 1 μl einengen. Die Anwendung von Fraktionierkolonnen mit einer möglichst großen Zahl von theoretischen Böden ist deshalb nicht zu umgehen. In Tab. 4.1. ist die Anreicherung von

Tabelle 4.1.
Anreicherung von ^{18}O durch Destillation von Wasser bei 60 °C ($\alpha = 1{,}006$) und bei 100 °C ($\alpha = 1{,}003$) in Kolonnen mit verschiedener Zahl an theoretischen Böden

Temperatur in °C	Trennfaktor α	Molenbruch an ^{18}O bei folgender Zahl an theoretischen Böden			
		100	500	1 000	1 500
60	1,006	0,0037	0,0384	0,442	0,940
100	1,003	0,0027	0,0073	0,0385	0,128

O–18 durch Destillation von Wasser bei zwei verschiedenen Temperaturen als Funktion der Zahl der theoretischen Böden angegeben. In Tab. 4.2. sind einige Dampfdruckverhältnisse zusammengestellt; die Trennfaktoren sind oberhalb 0 °C im allgemeinen verhältnismä-

ßig klein. Das Verfahren der Wasserdestillation zur Gewinnung von D_2O ist inzwischen durch die Austauschverfahren verdrängt worden. Für die Darstellung von $H_2{}^{18}O$ besitzt die Wasserdestillation jedoch auch heute noch Bedeutung.

Tabelle 4.2.
Dampfdruckverhältnisse

Stoffpaar	Temperatur in °K	Dampfdruckverhältnisse p_{leicht}/p_{schwer}
H_2/HD	23	1,60
H_2O/HDO	273,2	1,12
	293,2	1,076
	313,2	1,059
	333,2	1,046
	353,2	1,035
	373,2	1,026
H_2O/D_2O	373,2	1,052
NH_3/ND_3	330,3	1,11
$^{10}BF_3/^{11}BF_3$	≈ 173	0,993
$^{12}CH_4/^{13}CH_4$	90,2	1,005
	156,2	1,003
$^{12}CO/^{13}CO$	68,2	1,011
	81,2	1,0069
$C^{16}O/C^{18}O$	68,2	1,0081
	81,2	1,0050
$^{16}O^{16}O/^{16}O^{18}O$	90,2	1,0054

Werte aus:

J. Kirshenbaum: Physical Properties and Analysis of Heavy Water. McGraw-Hill Book Comp., New York 1951, S. 25 ff.

Hydrocarbon Research Inc., Report NYO–889 USAEC, 15. März 1951.

I. Mühlenpfordt, H. Kronberger, P. T. Nettley: Isis 1957.

T. F. John: Isis 1957.

W. Groth, H. Ihle, A. Murrenhoff: Z. Naturforsch. **9**a (1954) 805.

(Vgl. auch W. Riezler, W. Walcher: Kerntechnik. B. G. Teubner Verlagsgesellschaft, Stuttgart 1958).

J. Kirshenbaum, H. C. Urey: J. chem. Physics **10** (1942) 706.

Thermodynamisch erheblich günstiger als die Destillation bei normaler Temperatur ist die Tieftemperaturdestillation von Wasserstoff oder Sauerstoff. Für das Dampfdruckverhältnis findet man (Tab.4.2.)

$$\frac{p_{H_2}}{p_{HD}} = 1{,}6\,(23\ °K). \tag{4.16}$$

Infolge des bedeutend höheren Trennfaktors (gegeben durch das Dampfdruckverhältnis) führt die Tieftemperaturdestillation des Wasserstoffs sehr viel rascher zum Ziel als die Wasserdestillation. Es genügt die Verwendung einer größeren Kolonne als erste Stufe und einer kleineren Kolonne als zweite Stufe (Abb. (4–5)). Dabei muß ein Kata-

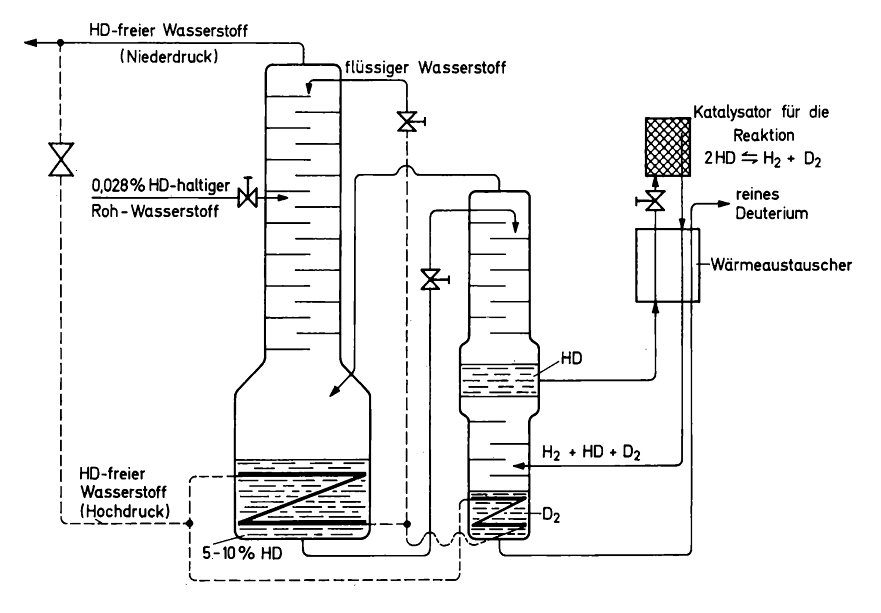


Abb. (4–5) Tieftemperaturdestillation von Wasserstoff. Nach K. CLUSIUS u. K. STARKE: Z. Naturforsch. **4**a (1949) 549.

lysator eingeschaltet werden, weil bei tiefer Temperatur die Austauschreaktion

$$2\,HD \rightleftharpoons H_2 + D_2 \tag{4.17}$$

nur sehr langsam abläuft. Das durch Destillation gewonnene Deuterium wird anschließend katalytisch verbrannt. Dabei wird schweres Wasser mit einem D_2O-Gehalt von etwa 99,9% gewonnen. Die Kosten für D_2O betragen zur Zeit etwa DM 200,-- pro kg. Am wirtschaft-

lichsten ist die Destillation von Wasserstoff an solchen Stellen, an denen er in größeren Mengen für synthetische Zwecke (z. B. für die Ammoniaksynthese) produziert wird.

4.9. Elektrolyse

Die Elektrolyse wurde erstmals 1933 von LEWIS und MCDONALD zur Trennung von Wasserstoff und Deuterium angewandt. Wenn man eine verdünnte Lösung eines Alkalihydroxids sehr lange elektrolysiert, so reichert sich das Deuterium im zurückbleibenden Wasser merklich an. Dies ist folgendermaßen zu erklären: Die Wanderungsgeschwindigkeit der Wasserstoffionen ist bedeutend größer als die Wanderungsgeschwindigkeit der Deuteriumionen; deshalb ist der an der Kathode gebildete Wasserstoff ärmer an Deuterium als der Elektrolyt.

Im natürlichen Wasser besteht der Wasserstoff zu 0,0156 Atomprozent aus Deuterium. Der elementare Trennfaktor ist näherungsweise gegeben durch das Verhältnis

$$\alpha = \left(\frac{x_D}{x_H}\right)_{fl.} : \left(\frac{x_D}{x_H}\right)_{g.} \tag{4.18}$$

und wird durch die relative Geschwindigkeit der Abscheidung bestimmt. Je nach den Arbeitsbedingungen bewegt sich α zwischen 3 und 12. Der Mittelwert liegt bei technischen Anlagen im allgemeinen in der Nähe von 5. In Gl. (4.18) steht der Quotient aus dem Molverhältnis x_D/x_H in der flüssigen Phase und in der gerade entstehenden Gasphase. Bei einer kurzfristigen Elektrolyse ändern sich beide Größen nicht merklich; sie steigen im Verlaufe einer längeren Elektrolyse kontinuierlich an. Der Gesamttrennfaktor $A = \alpha^S$, der dabei in der flüssigen Phase erreicht werden kann, ergibt sich durch Integration über den gesamten Vorgang der Elektrolyse. In Abb. (4–6) ist der Gehalt an Deuterium im Elektrolyten als Funktion der Volumenreduktion durch Elektrolyse aufgezeichnet. Aus dieser Abbildung entnimmt man, daß zur Gewinnung von 1 l „schwerem Wasser“ mit 99 Atomprozent Deuterium ($x_D' = 0{,}99$) aus gewöhnlichem Wasser ($x_D = 1{,}56 \cdot 10^{-4}$) bei einem Trennfaktor $\alpha = 5$ eine Menge von $1{,}65 \cdot 10^5$ l (165 t) Wasser auf 1 l elektrolysiert werden muß. Die Ausbeute an Deuterium beträgt dabei nur 3,6%. Es liegt auf der Hand, daß eine derartige Elektrolyse nicht in einem Ansatz durchgeführt werden kann; die Konzentration des Elektrolyten würde sich viel zu stark

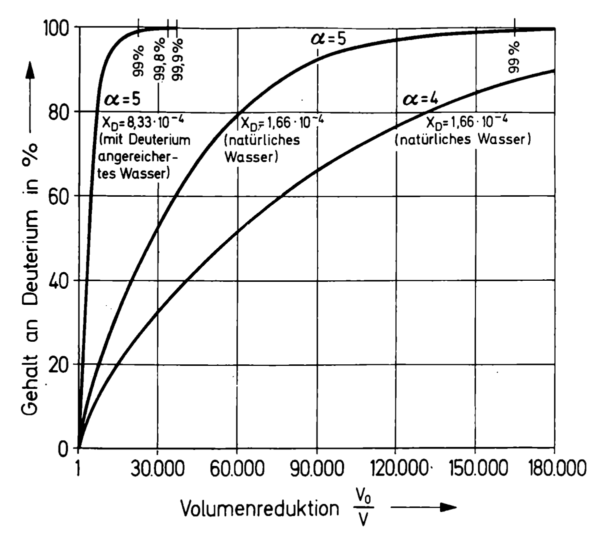


Abb. (4–6) Gehalt an Deuterium im Elektrolyten als Funktion der Volumenreduktion durch Elektrolyse. Aus E. W. WASHBURN u. H. C. UREY: Proc. nat. Acad. Sci. USA **18** (1932) 496.

erhöhen. Man elektrolysiert deshalb stufenweise in Zellen mit immer kleinerem Fassungsvermögen und trennt das Wasser anschließend durch Destillation vom Elektrolyten. So kann man in jeder Stufe das Volumen durch Elektrolyse auf etwa 1/10 einengen und erreicht dabei jeweils einen Gesamttrennfaktor $A = \alpha^S \approx 6{,}5$; d. h. es sind 5 bis 7 Stufen erforderlich, um hochprozentiges D_2O zu gewinnen.

Bei der Isotopentrennung von Deuterium und Wasserstoff durch Elektrolyse kann sich der Isotopenaustausch

$$H_2O + HD \rightleftharpoons HDO + H_2 \tag{4.19}$$

störend bemerkbar machen. Spielt dieses Isotopenaustauschgleichgewicht, das eine Gleichgewichtskonstante von etwa 3 hat, eine wichtige Rolle, dann wird die Trennwirkung entsprechend herabgesetzt. So findet man bei der Elektrolyse an Platin, das die Einstellung dieses Gleichgewichts katalysiert, nur einen Trennfaktor von etwa 3.

Die Elektrolyse ist verhältnismäßig teuer. Sie kommt hauptsächlich dort in Frage, wo billiger Strom zur Verfügung steht (z. B. in Norwegen). Für die Trennung der Isotope anderer Elemente ist die Elektrolyse noch unwirtschaftlicher.

Durch Elektrolyse von Lithiumsalzen an Amalgamelektroden wurden Trennfaktoren von etwa 1,02 bis 1,05 erzielt; dabei reichert sich

^{7}Li in der Lösung an. Auch durch Schmelzflußelektrolyse ist eine Trennung der Lithiumisotope möglich.

4.10. Ionenwanderung

Die unterschiedlichen Wanderungsgeschwindigkeiten von isotopen Ionen in einer Lösung oder einer Salzschmelze können ebenfalls als Grundlage einer Isotopentrennung dienen. Bei der Elektrolyse wird das beweglichere Ion das weniger bewegliche auf dem Weg zur Elektrode überholen. Die Anreicherung ist gegeben durch den Ausdruck

$$\frac{x_1}{x_1^0} = 1 + \frac{2\,\Delta u\,t}{\sqrt{\pi D t}}. \tag{4.20}$$

Δu ist der Unterschied in den Ionenbeweglichkeiten, D der Diffusionskoeffizient und t die Zeit. Die Anreicherung wächst mit der Stromdichte an. Zu Beginn der Elektrolyse ist der Trenneffekt verhältnismäßig groß; dann macht sich in immer stärkerem Maße eine Rückvermischung infolge Diffusion bemerkbar. Wirksame Trennungen

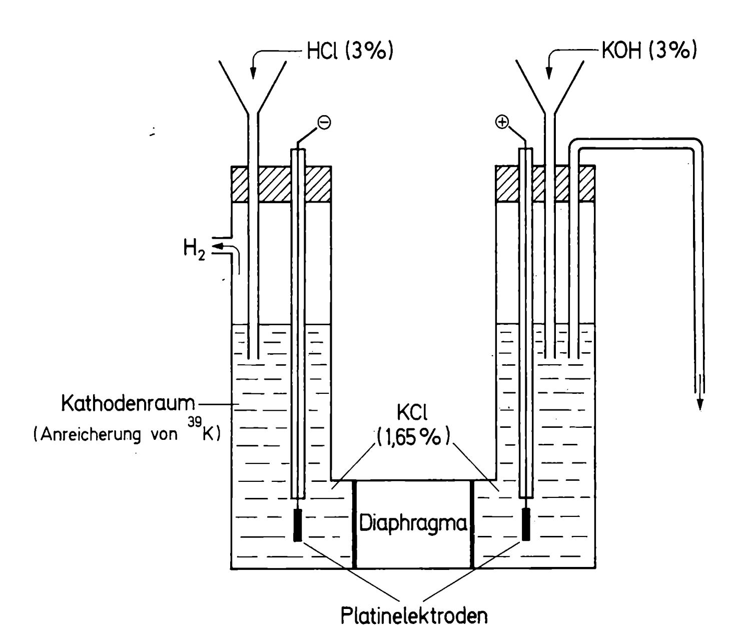


Abb. (4–7) Trennung der Kaliumisotope auf Grund der unterschiedlichen Wanderungsgeschwindigkeiten im elektrischen Feld. Nach A. K. BREWER, S. L. MADORSKY u. J. W. WESTHAVER: Science [New York] **104** (1946) 156.

können nur durch lange Versuchszeiten erreicht werden. Um extrem lange Rohre zu vermeiden, arbeitet man im Gegenstrom. Dabei wird die Wanderung der Ionen kompensiert durch einen Transport von Elektrolytlösung in entgegengesetzter Richtung derart, daß nur das leichtere Ion sich in Richtung auf die Elektrode bewegt. Konvektionsströme werden durch Verwendung eines mit porösem Material (z. B. Glaswolle oder gesintertem Glas) gefüllten Rohres verhindert; dieses Rohr entspricht der Trennsäule in einer Füllkörperkolonne.

In Abb. (4–7) ist ein Gerät zur Trennung der Kaliumisotope durch Elektrolyse von Kaliumchlorid schematisch dargestellt. Die an der Kathode entstehende Lauge wird kontinuierlich durch Zugabe von Salzsäure neutralisiert, ebenso die an der Anode entstehende Säure durch Zugabe von Lauge. Nach einer Betriebsdauer von 19 Tagen bei einer Stromstärke von 0,5 A wurde eine Erhöhung des Verhältnisses K–39 : K–41 von 14,2 auf 24,0 festgestellt. Dies entspricht einem elementaren Trennfaktor $\alpha = 1{,}0022$ und einer Zahl von etwa 100 theoretischen Böden pro cm Trennsäule. Ähnliche Trennungen wurden mit Rubidiumsalzen und mit Chloridionen ausgeführt.

Von praktischer Bedeutung ist die unterschiedliche Ionenwanderung isotoper Ionen bei der Schmelzflußelektrolyse. Der Isotopieeffekt ist gegeben durch das Verhältnis

$$\mu = \frac{\Delta u}{u} \bigg/ \frac{\Delta M}{M}. \tag{4.21}$$

u ist die Ionenbeweglichkeit und M die Masse der Ionen. Für den Isotopieeffekt gilt auch die experimentell gefundene Beziehung

$$\mu = -0{,}5 \frac{2{,}1\,M^-}{2{,}1\,M^- + M^+}. \tag{4.22}$$

Die Methode der Schmelzflußelektrolyse wurde erstmals zur Trennung der Isotope des Kupfers, Silbers und Zinks angewendet (Klemm 1951). Später wurden auf diese Art die Lithiumisotope getrennt, wobei man eine Lithiumchloridschmelze bei 650 °C zwischen Kohleelektroden elektrolysierte. Nach 8 Tagen (300 Amperestunden) war die Konzentration des Li–6 im Kathodenraum von 7,4 auf 20 Atomprozent angestiegen.

4.11. Austauschverfahren

Die Austauschverfahren beruhen auf den Isotopieeffekten bei Isotopenaustauschgleichgewichten (vgl. Abschn. 3.3.). Diese Verfahren haben in den vergangenen Jahren sehr an Bedeutung gewonnen, zumal in den meisten Fällen recht hohe Trennfaktoren erreicht werden. Bei den Austauschverfahren ist der Trennfaktor gegeben durch den Austauschkoeffizienten α (vgl. Gl. (3.36)), der bei einfachen Isotopenaustauschreaktionen mit der Gleichgewichtskonstanten identisch ist. Ebenso wie in den vorausgehenden Fällen ist der Trennfaktor von der Temperatur abhängig. Für das praktisch wichtige Isotopenaustauschgleichgewicht

$$HD\,(g.) + H_2O\,(fl.) \rightleftharpoons H_2\,(g.) + HDO\,(fl.), \qquad (4.23)$$

das sich bei 80 °C an Nickel- oder Platinkatalysatoren hinreichend rasch einstellt, beträgt die Gleichgewichtskonstante $K = \alpha \approx 3$.

Um kontinuierliche Verfahren zu ermöglichen, arbeitet man entweder mit einer sogenannten Phasenumkehr oder bei zwei verschiedenen Temperaturen.

a) Methode der Phasenumkehr oder chemischen Umwandlung: Diese Methode sei am Beispiel des Isotopenaustauschgleichgewichtes (Gl. (4.23)) zwischen gasförmigem Wasserstoff und flüssigem Wasser erläutert (Abb. (4–8)). Am Boden der Kolonne wird Wasser zum Sieden erhitzt; gleichzeitig wird durch Elektrolyse Wasserstoff erzeugt. Am Kopf der Kolonne kondensiert der Wasserdampf; der Wasserstoff wird wieder zu Wasser verbrannt. Die Kolonne ist mit einem geeigneten Katalysator beschickt. Im Gegenstromverfahren kommen der aufsteigende Wasserstoff und das von oben zurücklaufende Wasser miteinander in Kontakt, so daß sich das Austauschgleichgewicht einstellen kann. Die Anreicherung ist durch die Zahl der theoretischen Böden bestimmt.
b) Energetisch günstiger als die chemische Umwandlung ist das Arbeiten bei zwei verschiedenen Temperaturen („Heiß-Kalt"-System). Dabei wird die Temperaturabhängigkeit des Gleichgewichtsisotopieeffektes ausgenutzt. Im Falle des Isotopenaustauschgleichgewichts (Gl. (4.23)) zwischen gasförmigem Wasserstoff und flüssigem Wasser arbeitet das „Heiß-Kalt"-System noch nicht wirtschaftlich. Sehr viel bessere Ergebnisse wurden erzielt bei dem Iso-

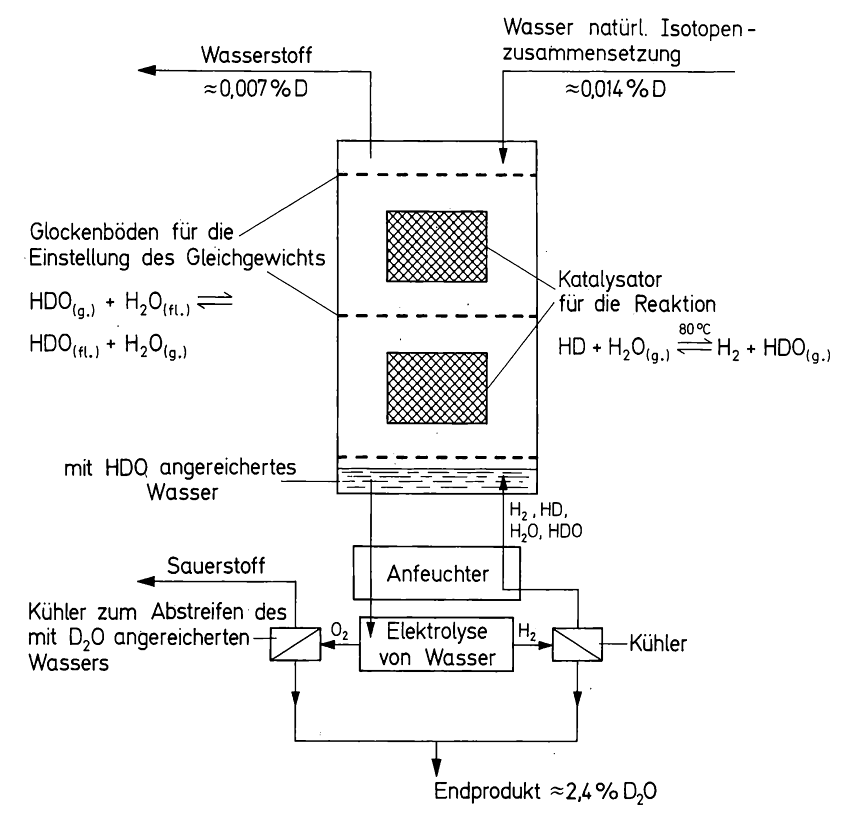


Abb. (4–8) Anreicherung von Deuterium nach der Methode der Phasenumkehr.

topenaustauschgleichgewicht zwischen gasförmigem Schwefelwasserstoff und flüssigem Wasser:

$$HDS + H_2O \rightleftharpoons H_2S + HDO. \tag{4.24}$$

Für die Gleichgewichtskonstante

$$K = \frac{[H_2S][HDO]}{[HDS][H_2O]} \tag{4.25}$$

wurden folgende Werte gefunden:

°C:	5	10	25	100
K:	2,52	2,48	2,34	1,92

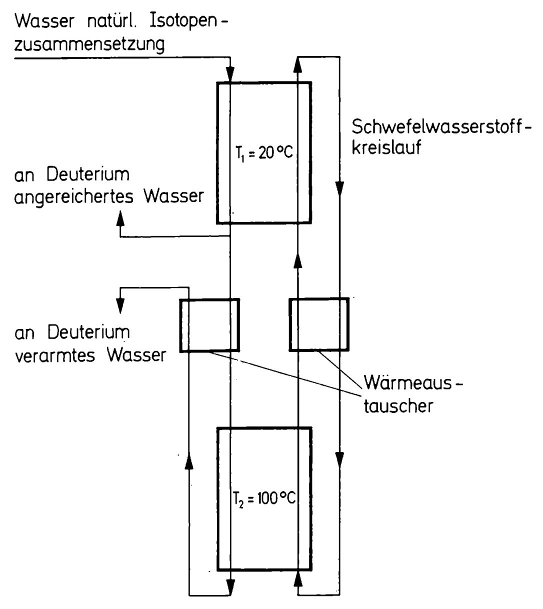


Abb. (4–9) Anreicherung von Deuterium in einem „Heiß-Kalt"-System.

Die Gleichgewichtskonstante ist also ziemlich stark von der Temperatur abhängig. In Abb.(4–9) ist das Schema des Verfahrens angegeben. In einem Reaktionsgefäß wird das Gleichgewicht bei 20 °C eingestellt, in einem zweiten Reaktionsgefäß bei 100 °C. Der Schwefelwasserstoff wird im Kreislauf herumgeführt. Wasser normaler Isotopenzusammensetzung tritt in das Reaktionsgefäß ein, das auf 20 °C temperiert ist; aus dem gleichen Gefäß wird Wasser mit höherer Deuteriumkonzentration entnommen, während aus dem auf 100 °C erhitzten Gefäß Wasser mit niedrigerer Deuteriumkonzentration abgeführt wird.

Für die Trennung der Wasserstoffisotope sind eine Reihe von weiteren Systemen von Interesse. So kann man den heterogenen Isotopenaustausch in den Systemen HX (X = Halogen)/H_2O bzw. HX_1/HX_2, Mercaptan/H_2O, Phosphin/H_2O, NH_3/H_2O, Amine/H_2O für die Anreicherung von Deuterium ausnutzen. Dabei ergeben sich jeweils besondere Probleme hinsichtlich der Auswahl geeigneter Katalysatoren und der Verhinderung der Korrosion. Beispielsweise beträgt in dem System

$$HCl + DBr \rightleftharpoons DCl + HBr \qquad (4.26)$$

der elementare Trennfaktor bei 25 °C $\alpha = K = 1{,}22$.

Die Austauschverfahren sind auch für die Trennung anderer Isotope geeignet. Allerdings sind die Trennfaktoren erheblich niedriger. Für die Anreicherung von N–15 kann folgende heterogene Isotopenaustauschreaktion dienen:

$$^{15}NH_3\,(g.) + {}^{14}NH_4{}^+\,(aq.) \rightleftharpoons {}^{14}NH_3\,(g.) + {}^{15}NH_4{}^+\,(aq.). \qquad (4.27)$$

Der elementare Trennfaktor hat bei 25 °C den Wert $\alpha = K = 1{,}034$. Zur Ausnutzung des Gleichgewichtsisotopieeffekts kann man folgendermaßen verfahren: Ein großer Überschuß an Ammoniak wird in einer Ammoniumsalzlösung aufgelöst und nach der Gleichgewichtseinstellung wieder ausgetrieben. Das Ammoniumsalz, das nunmehr um den Faktor 1,034 (25 °C) an N–15 angereichert ist, wird mit Lauge zersetzt. Das entstehende Ammoniakgas wird wiederum im Überschuß mit einer Ammoniumsalzlösung ins Gleichgewicht gesetzt usw. Nach s-maliger Wiederholung der Operation beträgt die Gesamtanreicherung an N–15: $A = (1{,}034)^s$. Am zweckmäßigsten arbeitet man nach dem Gegenstromprinzip in Füllkörperkolonnen unter Verwendung mehrerer Stufen.

Die Anreicherung des N–15 kann auch auf Grund der Austauschreaktion zwischen gasförmigem Stickoxid und einer Salpetersäurelösung erfolgen:

$$^{15}NO\,(g.) + H^{14}NO_3\,(aq.) \rightleftharpoons {}^{14}NO\,(g.) + H^{15}NO_3\,(aq.). \qquad (4.28)$$

Für die Trennung von C–13 und C–12 ist folgende Austauschreaktion geeignet:

$$H^{12}CN\,(g.) + {}^{13}CN^-\,(aq.) \rightleftharpoons H^{13}CN\,(g.) + {}^{12}CN^-\,(aq.). \qquad (4.29)$$

Hier wird das schwerere Isotop im gasförmigen Cyanwasserstoff angereichert. Die Gleichgewichtskonstante für diese Austauschreaktion beträgt

$$K = \frac{[H^{13}CN]\,[^{12}CN^-]}{[H^{12}CN]\,[^{13}CN^-]} = 1{,}026\,(18\ °C). \qquad (4.30)$$

Zur technischen Ausführung der Trennung wird im Boden einer Kolonne Natriumcyanidlösung mit Schwefelsäure gemischt. Dem aufsteigenden Cyanwasserstoff entgegen strömt Natronlauge, die mit dem Cyanwasserstoff Natriumcyanidlösung bildet. Der stationäre Zustand wird nach etwa einer Woche erreicht. Dann kann am Kopf der

Kolonne kontinuierlich der an C–13 angereicherte Cyanwasserstoff entnommen werden. Die Nachteile des Verfahrens sind die Giftigkeit des Cyanwasserstoffs und seine Neigung zur Bildung fester Polymere. Deshalb ist der Austausch zwischen Kohlensäure und einer Bicarbonatlösung von Interesse

$$^{13}CO_2\,(g.) + H^{12}CO_3^-\,(aq.) \rightleftharpoons {}^{12}CO_2\,(g.) + H^{13}CO_3^-\,(aq.), \quad (4.31)$$

obwohl sich das Austauschgleichgewicht verhältnismäßig langsam einstellt und der Trennfaktor bedeutend niedriger ist ($\alpha = 1{,}017$).

Weitere Austauschreaktionen, die im Hinblick auf Isotopentrennungen untersucht wurden, sind:

$$C^{16}O_2\,(g.) + H_2{}^{18}O\,(fl.) \rightleftharpoons C^{16}O^{18}O\,(g.) + H_2{}^{16}O\,(fl.) \quad (4.32)$$

(elementarer Trennfaktor $\alpha = 1{,}046$ bei 25 °C);

$$^{34}SO_2\,(g.) + H^{32}SO_3^-\,(aq.) \rightleftharpoons {}^{32}SO_2\,(g.) + H^{34}SO_3^-\,(aq.) \quad (4.33)$$

(elementarer Trennfaktor $\alpha = 1{,}012$ bei 25 °C);

$$^{6}Li^+\,(aq.) + {}^{7}Li\,(Hg) \rightleftharpoons {}^{7}Li^+\,(aq.) + {}^{6}Li\,(Hg). \quad (4.34)$$

Bei dieser Reaktion wird das Lithium zwischen einer wässrigen Lithiumchloridlösung und Lithiumamalgam ausgetauscht.

4.12. Ionenaustausch

Der Austausch in einem Harzaustauscher, in einem anorganischen Ionenaustauscher oder in einer chromatographischen Säule ist ein Spezialfall einer Austauschreaktion. Da die Ionenaustauschverfahren verhältnismäßig häufig zur Isotopentrennung Verwendung finden, werden sie in einem besonderen Abschnitt behandelt.

Der elementare Trennfaktor in einer mit einem Ionenaustauscher gefüllten Trennsäule hängt von der Gleichgewichtskonstanten des Austauschgleichgewichts der betreffenden isotopen Ionen ab, z. B.

$$^{7}Li^+ + \overline{^{6}Li} \rightleftharpoons {}^{6}Li^+ + \overline{^{7}Li}. \quad (4.35)$$

Die überstrichenen Symbole bedeuten, daß die Ionen am Austauscher

gebunden sind. Solche Austauschgleichgewichte werden häufig durch den Verteilungskoeffizienten charakterisiert, der mit der Gleichgewichtskonstanten der Austauschreaktion (Gl. (4.35)) identisch ist. Mit einem geeigneten Ionenaustauscher kann man in hinreichend langen Trennsäulen eine partielle Trennung der Isotope erreichen; dabei erscheint im Eluat zunächst die schneller wandernde Komponente fast in reiner Form.

TAYLOR und UREY versuchten als erste 1938 die Isotopentrennung durch Ionenaustausch; sie verwendeten eine mit synthetischem Zeolith gefüllte Trennsäule für die Trennung der Isotope des Lithiums, Kaliums und Stickstoffs (in Form von Ammoniumionen). Eine bessere Trennung der Lithiumisotope erreichten GLÜCKAUF und Mitarbeiter (1949) mit einem Harzaustauscher und Lithiumacetat.

Literatur zu Kapitel 4

1. W. RIEZLER, W. WALCHER: Kerntechnik. B. G. Teubner Verlagsgesellschaft, Stuttgart 1958, Kap. 2.3.
2. K. COHEN: The Theory of Isotope Separation. McGraw-Hill Book Comp., New York 1951.
3. A. E. BRODSKY: Isotopenchemie. Akademie-Verlag, Berlin 1961, Kap. 3.
4. G. M. MURPHY, H. C. UREY, J. KIRSHENBAUM: Production of Heavy Water. McGraw Hill Book Comp., New York 1955.
5. E. W. BECKER: Heavy Water Production. IAEA, Wien 1962. Review Series Nr.21.
6. Proceedings of the Second United Nations International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy. Bd. 4: Production of Nuclear Materials and Isotopes. Session C – 14 und C – 15: Methods of Separating Isotopes. United Nations Publication. Genf 1958.
7. C. BRUNNÉ, H. VOSHAGE: Massenspektrometrie. Verlag Karl Thiemig KG, München 1964.

Übungen zu Kapitel 4

1. Aus natürlichem Uran (0,72 Molprozent U–235) soll durch Gasdiffusion der Hexafluoride ein auf 90 Molprozent U–235 angereichertes Uran hergestellt werden. Wie groß ist die Mindestzahl der erforderlichen Stufen? Wie groß ist die Gesamtanreicherung?

2. Wie groß ist der maximale Trennfaktor für die Trennung von H_2 und HD bzw. $^{12}CH_4$ und $^{13}CH_4$ durch Gasdiffusion?

3. In einem Dempsterschen Massenspektrometer werden einfach positiv geladene Ionen mit den Massenzahlen 12 und 14 durch

eine Potentialdifferenz von 1000 V beschleunigt und dann durch ein Magnetfeld mit der Induktionsflußdichte 900 Gauß auf eine Kreisbahn gebracht. Wo müssen die Sammelplatten für die zwei verschiedenen Ionensorten aufgestellt werden, d. h. wie groß sind die Radien der Kreisbahnen?

4. Wie groß ist der Abstand, mit dem die Plutoniumisotope Pu–239 und Pu–242 in einem elektromagnetischen Separator auftreffen, wenn ihre Ladung +1, die Beschleunigungsspannung 3000 V und die Induktionsflußdichte 2000 Gauß betragen?

5. Welcher maximale Trennfaktor wird für U–235 und U–238 bei 100 °C in einer Ultrazentrifuge erreicht, wenn das Uran als UF_6 eingesetzt wird und $\omega r = 400$ m/s beträgt? Wie vielen Stufen einer Gasdiffusionsanlage entspricht diese Ultrazentrifuge? (Anleitung: In Gl. (4.12) führe man an Stelle der Partialdrucke die Molenbrüche x_1 und x_1' der Komponente (1) vor und nach der Trennoperation ein. Aus der so erhaltenen Gleichung leite man einen allgemeinen Ausdruck $\alpha = f(\mathrm{M}_1, \mathrm{M}_2, \omega r, T)$ für den Trennfaktor der Ultrazentrifuge ab.)

6. Wieviele Stufen benötigt man für die Anreicherung von HD bzw. HDO von 0,015 auf 10 Molprozent a) durch Destillation von Wasser bei 100 °C, b) durch Destillation von Wasserstoff bei 23 °K?

7. Gegeben ist flüssiges Ammoniak mit 1 Molprozent ND_3. Durch Druckdestillation bei $T = 330$ °K soll ND_3 im Sumpf der Kolonne bis auf 20 Molprozent angereichert werden. Das Dampfdruckverhältnis der reinen Komponenten bei dieser Temperatur ist $p°(NH_3)/p°(ND_3) = 1{,}11$. Wie groß ist die erforderliche Stufenzahl s (Zahl der theoretischen Böden)?

8. Wie groß muß die Zahl der Stufen sein, um N–15 bei 25 °C durch das Austauschgleichgewicht (Gl. (4.27)) vom natürlichen Gehalt auf 20 % anzureichern?

9. Zur Gewinnung von Deuterium nach dem „Heiß-Kalt-Verfahren" nutzt man folgendes Austauschgleichgewicht aus

$$\mathrm{HDS\,(g.) + H_2O\,(fl.) \rightleftharpoons H_2S\,(g.) + HDO\,(fl.)}.$$

Die Reaktionsenthalpie beträgt $\Delta H = -0{,}6$ kcal/Mol (zwischen

0 °C und 100 °C). Bei 100 °C ist die Gleichgewichtskonstante $K = 1{,}92$. Man berechne die Temperatur, bei welcher der Trennfaktor um 20% höher ist als bei 100 °C.

5. Radioaktiver Zerfall

5.1. Zerfallsreihen

Wie bereits in Abschnitt 1.1. erwähnt, wurde die Aufklärung der natürlich radioaktiven Zerfallsreihen eingeleitet durch die Beobachtung von BECQUEREL (1896), daß photographische Platten durch Uransalze geschwärzt werden. Das gleiche beobachtete G. C. SCHMIDT (1898) an Thoriumpräparaten. Die chemische Untersuchung der Pechblende, des wichtigsten Uranminerals, durch M. CURIE führte bereits 1898 zur Entdeckung des Poloniums und des Radiums. Durch weitere Untersuchungen wurde dann sehr bald eine große Anzahl der radioaktiven Folgeprodukte des Urans und des Thoriums aufgefunden. Die radioaktiven Nuklide erhielten zunächst Namen wie UX_1, UX_2, UZ, die ihre chemische Zuordnung noch nicht erkennen ließen. Erst später, nachdem SODDY (1913) den Begriff der Isotopie eingeführt hatte, wurde es üblich, neben dem chemischen Symbol die Massenzahl zu verwenden (UX_1=Th–234; UX_2=Pa–234m; UZ=Pa–234). In Abb. (5–1) sind die Glieder der radioaktiven Zerfallsreihen eingetragen (Ausschnitt aus der Nuklidkarte). Diese Abbildung läßt erkennen, daß innerhalb der einzelnen Zerfallsreihen jeweils α- und β^--Umwandlungen aufeinanderfolgen. Für diese Umwandlungen gelten die radioaktiven Verschiebungssätze von FAJANS und SODDY (1913):

1. Beim α-Zerfall nimmt die Massenzahl um 4 Einheiten ab, die Ordnungszahl um 2 Einheiten ($A'=A-4$; $Z'=Z-2$).
2. Beim β^--Zerfall ändert sich die Massenzahl nicht; die Ordnungszahl nimmt um eine Einheit zu ($A'=A$; $Z'=Z+1$).

Diejenigen radioaktiven Nuklide, die in einem genetischen Zusammenhang stehen, gehören einer Zerfallsreihe oder „Familie“ an. Die Glieder einer Familie besitzen auf Grund der Verschiebungssätze entweder die gleiche Massenzahl, oder ihre Massenzahl unterscheidet sich um 4 Einheiten. Es sind somit insgesamt 4 verschiedene Zerfallsreihen oder Familien möglich (wie auch Abb. (5–1) erkennen läßt),

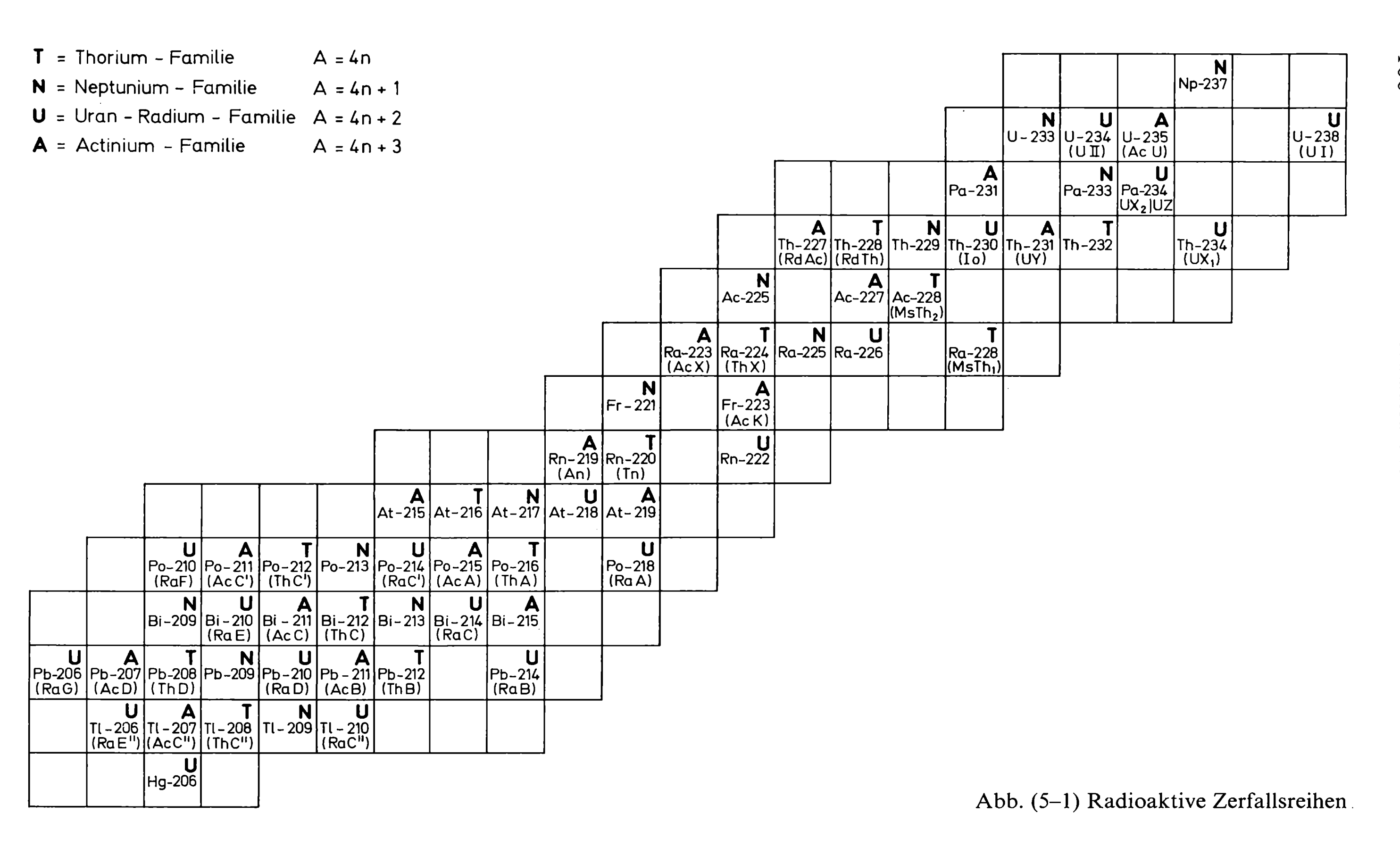


Abb. (5–1) Radioaktive Zerfallsreihen.

Tabelle 5.1.
Thorium-Familie (A = $4n$)

Nuklid	Halbwertzeit	Zerfallsart	Maximale Energie der Strahlung in MeV
^{232}Th	$1,41 \cdot 10^{10}$ a	α	4,01
^{228}Ra ($MsTh_1$)	6,7 a	β	0,05
^{228}Ac ($MsTh_2$)	6,13 h	β	2,11
^{228}Th (RdTh)	1,91 a	α	5,43
^{224}Ra (ThX)	3,64 d	α	5,68
^{220}Rn (Tn)	55 s	α	6,29
^{216}Po (ThA)	0,15 s	α	6,78
^{212}Pb (ThB)	10,64 h	β	0,58
^{212}Bi (ThC)	60,6 min	α, β	α : 6,09; β : 2,25
→ ^{212}Po (ThC′)	$3,0 \cdot 10^{-7}$ s	α	8,78
→ ^{208}Tl (ThC″)	3,10 min	β	1,80
^{208}Pb (ThD) ←		stabil	

Tabelle 5.2.
Neptunium-Familie (A = $4n + 1$)

Nuklid	Halbwertzeit	Zerfallsart	Maximale Energie der Strahlung in MeV
^{237}Np	$2,14 \cdot 10^{6}$ a	α	4,78
^{233}Pa	27,0 d	β	0,26
^{233}U	$1,62 \cdot 10^{5}$ a	α	4,82
^{229}Th	$7,34 \cdot 10^{3}$ a	α	4,84
^{225}Ra	14,8 d	β	0,36
^{225}Ac	10,0 d	α	5,83
^{221}Fr	4,8 min	α	6,34
^{217}At	0,032 s	α	7,07
^{213}Bi	47 min	α[1], β	α : 5,87; β : 1,39
→ ^{213}Po	$4 \cdot 10^{-6}$ s	α	8,38
→ ^{209}Tl	2,2 min	β	1,99
^{209}Pb ←	3,3 h	β	0,64
^{209}Bi		stabil	

[1] 2,2%

deren Massenzahlen den Formeln $A=4n$, $A=4n+1$, $A=4n+2$ und $A=4n+3$ gehorchen (n ist eine ganze Zahl). Drei Zerfallsreihen wurden bei der Aufklärung der natürlichen Radioaktivität des Urans und des Thoriums gefunden. Die Zerfallsreihe mit den Massenzahlen $A=4n$ leitet sich von Th–232 ab. Dies ist das einzige in größeren Mengen in der Natur vorkommende Thoriumisotop; d. h. das Thorium ist praktisch ein Reinelement. Die Zerfallsreihe mit den Massenzahlen $A=4n+2$ leitet sich vom U–238 ab und die Zerfallsreihe mit den Massenzahlen $A=4n+3$ vom U–235. U–238 und U–235 sind die beiden in größeren Mengen in der Natur vorkommenden Uranisotope (99,2743% U–238 und 0,7196% U–235); daneben ist in sehr geringen Mengen als Folgeprodukt des U–238 (U I) noch das U–234 (U II) vorhanden (0,0057%). Das U–235 führt auch den Namen Actinouran,

Tabelle 5.3.
Uran-Radium-Familie ($A = 4n + 2$)

Nuklid	Halbwertzeit	Zerfallsart	Maximale Energie der Strahlung in MeV
^{238}U (U I)	$4{,}51 \cdot 10^9$ a	α	4,20
^{234}Th (UX_1)	24,1 d	β	0,19
┌ ^{234m}Pa (UX_2)	1,17 min	β	2,29
├→ ^{234}Pa (UZ) ─┐	6,75 h	β	0,53
└→ ^{234}U (U II) ←┘	$2{,}47 \cdot 10^5$ a	α	4,77
^{230}Th (Io)	$8{,}0 \cdot 10^4$ a	α	4,68
^{226}Ra	1602 a	α	4,78
^{222}Rn	3,82 d	α	5,49
┌ ^{218}Po (RaA)	3,05 min	α, β[1]	α : 6,00
├→ ^{214}Pb (RaB) ─┐	26,8 min	β	1,03
└→ ^{218}At ─┤	$\approx$ 2 s	α	6,70
┌ ^{214}Bi (RaC) ←┘	19,7 min	α,[1] β	α : 5,51; β : 3,26
├→ ^{214}Po (RaC′) ─┐	$1{,}64 \cdot 10^{-4}$ s	α	7,69
└→ ^{210}Tl (RaC″) ─┤	1,3 min	β	2,3
┌ ^{210}Pb (RaD) ←┘	21 a	α[1], β	α : 3,72; β : 0,061
├→ ^{206}Hg ─┐	8 min	β	1,3
├→ ^{210}Bi (RaE) ─┤	5,0 d	α[1], β	α : 4,69; β : 1,16
├→ ^{206}Tl (RaE″) ←┤	4,19 min	β	1,52
└→ ^{210}Po (RaF) ─┤	138,4 d	α	5,31
^{206}Pb (RaG) ←┘		stabil	

[1] < 0,1%

weil unter seinen Folgeprodukten das wichtigste und langlebigste Actiniumisotop Ac–227 (Halbwertzeit 22a) auftritt. Die Zerfallsreihen werden nach ihren Mutternukliden oder anderen wichtigen Gliedern der Zerfallsreihen benannt. So unterscheidet man die Thorium-Familie, die Uran-Radium-Familie und die Actinium-Familie.

Die vierte mögliche Zerfallsreihe, deren Massenzahlen der Formel $A=4n+1$ gehorchen, kommt nicht in der Natur vor. Diese Zerfallsreihe wurde erst nach der künstlichen Darstellung der Transuranelemente aufgeklärt. Das langlebigste Glied dieser künstlichen Zerfallsreihe ist das Np–237 (Halbwertzeit $2{,}14 \cdot 10^6$ a). Man spricht deshalb von der Neptunium-Familie. Als die Elemente entstanden, waren wahrscheinlich auch alle Glieder der Neptunium-Familie in der Natur vorhanden. Die Neptunium-Familie ist jedoch inzwischen auf der Erde zerfallen.

In den Tabellen 5.1. bis 5.4. sind die Glieder der vier Zerfallsreihen eingetragen. Als Endprodukt der natürlichen Zerfallsreihen entsteht

Tabelle 5.4.
Actinium-Familie ($A = 4n + 3$)

Nuklid	Halbwertzeit	Zerfallsart	Maximale Energie der Strahlung in MeV
^{235}U (AcU)	$7{,}10 \cdot 10^8$ a	α	4,58
^{231}Th (UY)	25,5 h	β	0,30
^{231}Pa	$3{,}25 \cdot 10^4$ a	α	5,02
^{227}Ac	22 a	α[1], β	α : 4,95; β : 0,046
^{227}Th (RdAc)	18,2 d	α	6,04
^{223}Fr (AcK)	22 min	α[1], β	α : 5,35; β : 1,15
^{223}Ra (AcX)	11,43 d	α	5,75
^{219}At	0,9 min	α, β[1]	α : 6,28
^{219}Rn (An)	4,0 s	α	6,82
^{215}Bi	7 min	β	
^{215}Po (AcA)	$1{,}8 \cdot 10^{-3}$ s	α, β[1]	α : 7,38
^{211}Pb (AcB)	36,1 min	β	1,36
^{215}At	10^{-4} s	α	8,01
^{211}Bi (AcC)	2,15 min	α, β[1]	α : 6,62
^{211}Po (AcC′)	0,52 s	α	7,45
^{207}Tl (AcC″)	4,79 min	β	1,44
^{207}Pb (AcD)		stabil	

[1] $< 5\%$

jeweils ein stabiles Bleiisotop (Pb–208 = ThD; Pb–206 = RaG; Pb–207 = AcD); als Endprodukt der Neptunium-Zerfallsreihe entsteht das Bi–209. In allen Zerfallsreihen treten Verzweigungen auf. Dabei finden die Umwandlungen entweder in der Reihenfolge α-Zerfall – β^--Zerfall oder in der Reihenfolge β^--Zerfall – α-Zerfall statt. In den meisten Fällen ist eine dieser beiden Möglichkeiten sehr stark vor der anderen bevorzugt. Bei der Neptunium- und Thorium-Familie hat man je eine Verzweigung gefunden, bei der Uran-Radium-Familie vier und bei der Actinium-Familie fünf.

Die einzelnen Glieder der Zerfallsreihen zeigen sehr verschiedene Halbwertzeiten, die im Bereich zwischen 10^{10} a (Th–232) und 0,3 μs (Po–212) liegen. Je kürzer die Halbwertzeit, um so energiereicher ist im allgemeinen die Strahlung.

5.2. Energetik des radioaktiven Zerfalls

Beim Studium der Zerfallsreihen ergeben sich die beiden folgenden Fragen:

a) Worin ist die Ursache für den radioaktiven Zerfall zu sehen?
b) Weshalb besitzen die instabilen Nuklide so unterschiedliche Halbwertzeiten?

Zur Beantwortung der Frage a) betrachtet man am besten die allgemeine Reaktionsgleichung für den radioaktiven Zerfall

$$A \longrightarrow B + x + \Delta E. \tag{5.1}$$

Diese Gleichung besagt: ein Nuklid A zerfällt in ein Nuklid B unter Aussendung eines Teilchens x; dabei wird die Energie ΔE frei. Gleichung (5.1) wird auch als mononukleare Reaktion bezeichnet in Anlehnung an die Klassifizierung chemischer Reaktionen in der Kinetik.

An Hand der Reaktionsgleichung (5.1) läßt sich die Frage a) folgendermaßen beantworten: Ein Nuklid kann dann spontan zerfallen, wenn die Masse der Reaktionsprodukte niedriger ist als die Masse des Ausgangsnuklids. Die freiwerdende Energie ΔE wird entsprechend dem Impulssatz zwischen dem Nuklid B und dem Teilchen x aufgeteilt; dabei bekommt das Teilchen x einen erheblich größeren Energiebetrag mit als das Nuklid B, sofern es eine sehr viel geringere Masse besitzt. Im Falle einer β^--Umwandlung kann man auch die Gleichung für die Bindungsenergie heranziehen (vgl. Abschn. 1.5.). Die allgemeine Reaktionsgleichung (5.1) gilt auch für den Fall, daß

nur ein γ-Quant ausgesandt wird (x=γ-Quant). Dann unterscheiden sich A und B nur durch ihren Energieinhalt, d. h. A und B sind isomere Nuklide; es findet eine isomere Umwandlung (abgekürzt I.U.) statt.

Die bei der radioaktiven Umwandlung freiwerdende Energie ΔE ergibt sich nach der Einsteinschen Beziehung

$$\Delta E = \Delta \mathrm{M} \cdot c^2 \tag{5.2}$$

aus der Differenz ΔM der Nuklidmassen M (vgl. Abschn. 1.6.):

$$\Delta \mathrm{M} = \mathrm{M_A} - (\mathrm{M_B} + \mathrm{M_x}). \tag{5.3}$$

An Stelle der Nuklidmassen kann man auch mit den Massendefekten δM rechnen, die ebenfalls tabelliert sind (vgl. Tab. 1.4.), und die Differenz zwischen der Summe der Massen der Nukleonen und der Nuklidmasse angeben (vgl. Abschn. 1.6., Gl. (1.13)):

$$\delta \mathrm{M} = \mathrm{Z} \cdot \mathrm{M_H} + (\mathrm{A}-\mathrm{Z})\,\mathrm{M_N} - \mathrm{M}. \tag{5.4}$$

Setzt man in diese Gleichung die Nuklidmassen für das Wasserstoffatom ($\mathrm{M_H}$) und für das Neutron ($\mathrm{M_N}$) ein, so ist

$$\delta \mathrm{M} = 1{,}0078252\,\mathrm{Z} + 1{,}0086652\,(\mathrm{A}-\mathrm{Z}) - \mathrm{M}. \tag{5.5}$$

Führt man in Gl. (5.3) die Massendefekte δM ein, so folgt

$$\Delta \mathrm{M} = (\delta \mathrm{M_B} + \delta \mathrm{M_x}) - \delta \mathrm{M_A}. \tag{5.6}$$

Diese Gleichung kann ebenso wie Gl. (5.3) zur Berechnung von ΔM dienen. Für die Berechnung der Energie ΔE aus ΔM nach Gl. (5.2) ist es wichtig zu wissen, daß eine atomare Masseneinheit (1 ame) 931,5 MeV entspricht (vgl. Abschn. 1.6.).

Zur Beantwortung der Frage b), weshalb die instabilen Nuklide nicht sofort zerfallen, kann man ähnliche Überlegungen heranziehen, wie sie aus der chemischen Reaktionskinetik bekannt sind. Betrachtet man die Potentialkurve, die der instabile Kern beim Zerfall durchlaufen sollte, so ergibt sich folgendes Bild (Abb. (5–2)): Der Energieinhalt des instabilen Kerns A ist um den Betrag ΔE höher als der Energieinhalt der Reaktionsprodukte B + x (Gl. 5.1). Der Kern A kann ganz bestimmte angeregte Energiezustände annehmen. Der radioaktive Zerfall nach Gl. (5.1) ist aber erst dann möglich, wenn seine Energie größer ist als eine bestimmte Schwellenenergie E_S. Diese Schwellen-

energie entspricht der Aktivierungsenergie einer chemischen Reaktion. Je größer die Schwellenenergie E_S für den Zerfall ist, um so kleiner ist die Wahrscheinlichkeit des Zerfalls.

Diese von der chemischen Reaktionskinetik geläufige Betrachtungsweise ist für den radioaktiven Zerfall allerdings in vielen Fällen nicht anwendbar. So zeigt sich beim α-Zerfall, daß der Kern nicht durch Erreichen der in Abb. (5–2) angedeuteten Schwellenenergie zerfällt, son-

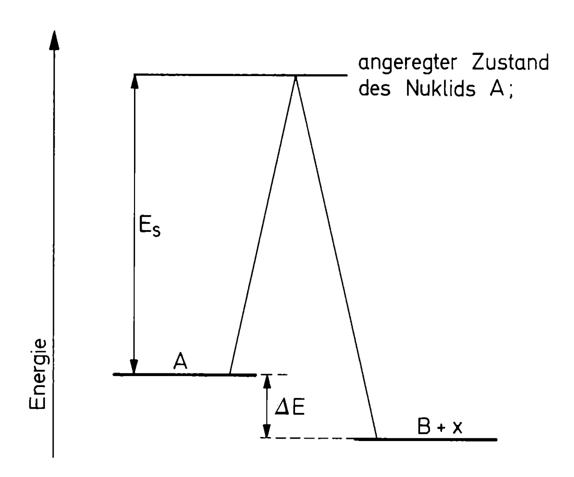


Abb. (5–2) Potentialkurve bei einer mononuklearen Reaktion.

dern dadurch, daß das α-Teilchen durch den Potentialberg hindurch-„tunnelt“ (Tunneleffekt). Dies ist offenbar der leichtere, d. h. energetisch bevorzugte Weg. Für die Wahrscheinlichkeit dieses Hindurch-Tunnelns ist die Energie des α-Teilchens maßgebend, d. h. die Energiedifferenz ΔE abzüglich der Rückstoßenergie des Kerns. Je größer die Energiedifferenz ΔE, desto größer ist auch die Wahrscheinlichkeit für den Zerfall. Nähere Einzelheiten werden in Abschnitt 7.2.2. besprochen.

5.3. Mononukleares Zeitgesetz für den radioaktiven Zerfall

Für die mononukleare Reaktion (5.1) gilt das Zeitgesetz

$$-\frac{\mathrm{d}N}{\mathrm{d}t} = \lambda N; \tag{5.7}$$

N ist die Zahl der Atome des betreffenden Radionuklids. Die Zerfallsrate dN/dt — d. h. die Zahl der pro Zeiteinheit zerfallenden radioaktiven Atome — ist proportional der Zahl der Atome N. Der Proportionalitätsfaktor λ heißt Zerfallskonstante, Dimension s^{-1}. Die Zerfallskonstante ist identisch mit der im vorausgehenden Abschnitt erwähnten Wahrscheinlichkeit für den Zerfall.

Das Zeitgesetz (Gl. (5.7)) ist aus der chemischen Reaktionskinetik bekannt; der radioaktive Zerfall ist das wichtigste Beispiel für eine mono-„molekulare" Reaktion. Durch Integration der Gl.(5.7) erhält man

$$N = N_0 e^{-\lambda t}; \tag{5.8}$$

N_0 ist die Zahl der radioaktiven Atome des betreffenden Radionuklids zur Zeit $t=0$.

In der Kernchemie benutzt man an Stelle der Zerfallskonstanten λ vorzugsweise die Halbwertzeit $t_{1/2}$, die eine anschaulichere Größe darstellt; die Halbwertzeit ist die Zeit, nach der die Hälfte der radioaktiven Atome des betreffenden Nuklids zerfallen ist: $N = \frac{N_0}{2}$.

Daraus folgt mit Gl. (5.8):

$$t_{1/2} = \frac{\ln 2}{\lambda} = \frac{0{,}69315}{\lambda}. \tag{5.9}$$

Führt man in Gl. (5.8) die Halbwertzeit ein, so erhält man

$$N = N_0 \left(\frac{1}{2}\right)^{t/t_{1/2}}. \tag{5.10}$$

Aus dieser Gleichung ersieht man sofort, daß die Zahl der radioaktiven Nuklide nach einer Halbwertzeit auf die Hälfte, nach zwei Halbwertzeiten auf ein Viertel, nach 7 Halbwertzeiten auf 1/128 (d. h. auf etwas weniger als 1%) und nach 10 Halbwertzeiten auf 1/1024 (d. h. auf etwa 1‰) abgesunken ist.

Zur Erläuterung der vorstehenden Gesetzmäßigkeit für den radioaktiven Zerfall sei als Beispiel die Altersbestimmung nach der ^{14}C-Methode angeführt: Die ^{14}C-Datierung beruht auf der natürlichen Bildung von C–14 in der Atmosphäre durch die Einwirkung der Höhenstrahlung. Man nimmt an, daß die Bildungsrate des C–14 über

lange Zeiträume hinweg konstant geblieben ist. Das C–14 verteilt sich infolge der Assimilation der ^{14}C-markierten Kohlensäure aus der Atmosphäre und infolge der Nahrungsaufnahme gleichmäßig auf alle Lebewesen. Es besitzt eine Halbwertzeit von 5730 a; mit dieser Halbwertzeit klingt der ^{14}C-Gehalt in altem Material ab, das von der Nachlieferung aus der Atmosphäre ausgeschlossen ist. Bei der ^{14}C-Datierung vergleicht man den ^{14}C-Gehalt in einem frischen und einem alten Material. So fand man z. B. in einer ägyptischen Mumie nur 58% des ^{14}C-Gehalts in frischem Material. Unter Verwendung von Gl. (5.10) erhält man

$$\frac{N}{N_0} = \left(\frac{1}{2}\right)^{t/t_{1/2}} = 0{,}58$$

bzw. für das Alter der Mumie:

$$t = t_{1/2} \cdot \frac{\lg 0{,}58}{\lg 0{,}5} = 4\,500\,\text{a}.$$

Wenn die Zeit t sehr klein ist im Vergleich zur Halbwertzeit ($t \ll t_{1/2}$), empfiehlt sich die Anwendung der folgenden Näherungsformel:

$$\begin{aligned} e^{-\lambda t} &= 1 - \lambda t + \frac{(\lambda t)^2}{2} - \dots \\ &= 1 - \ln 2 \frac{t}{t_{1/2}} + \frac{(\ln 2)^2}{2}\left(\frac{t}{t_{1/2}}\right)^2 - \dots \end{aligned} \tag{5.11}$$

Von untergeordneter Bedeutung ist der Begriff der mittleren Lebensdauer τ. Diese ist entsprechend der üblichen Definition eines Mittelwertes folgendermaßen definiert:

$$\tau = \frac{1}{N_0} \int_0^\infty N dt; \tag{5.12}$$

mit Gl. (5.8) folgt daraus

$$\tau = \int_0^\infty e^{-\lambda t}\, \mathrm{d}t = \frac{1}{\lambda}. \tag{5.13}$$

Setzt man diesen Wert in Gl. (5.8) ein $\left(t = \tau = \frac{1}{\lambda}\right)$, so wird $N = N_0 \frac{1}{e}$; d. h. die mittlere Lebensdauer ist die Zeit, nach der die Zahl der Atome eines Radionuklids auf den e-ten Teil abgesunken ist.

Die Halbwertzeit bzw. Zerfallskonstante oder mittlere Lebensdauer eines Radionuklids ist im allgemeinen nicht abhängig von den äußeren Bedingungen, wie Druck, Temperatur, Aggregatzustand oder Bindungszustand; Ausnahmen werden in Abschnitt 15.5.7. besprochen.

5.4. Aktivität und Masse

Der radioaktive Zerfall eines Nuklids bedingt die Aktivität der betreffenden Substanz. Die Aktivität A ist identisch mit der Zerfallsrate

$$A = -\frac{\mathrm{d}N}{\mathrm{d}t} = \lambda N. \tag{5.14}$$

Man gibt die Zerfallsrate an als Zahl der Kernumwandlungen (Transmutationen) pro Sekunde, abgekürzt tps, Dimension s^{-1}. Für den zeitlichen Abfall der Aktivität gilt das gleiche Gesetz wie für den zeitlichen Abfall der Zahl der Atome des betreffenden Nuklids:

$$A = A_0 \cdot e^{-\lambda t} = A_0 \left(\frac{1}{2}\right)^{t/t_{1/2}}. \tag{5.15}$$

Die Einheit der Aktivität ist auf das Radium bezogen, das als Zerfallsprodukt des U–238 auftritt (Ra–226). Die Aktivität von einem Gramm Radium wurde als 1 Curie bezeichnet und zu $3{,}7 \cdot 10^{10}$ tps gemessen. Spätere genauere Messungen lieferten etwas abweichende Werte für die Aktivität von 1 g Radium (Ra–226), so daß man, um die Schwankungen dieser Einheit infolge der Meßungenauigkeiten zu vermeiden, definiert hat:

$$1 \text{ Curie} (1 \text{ Ci}) = 3{,}700 \cdot 10^{10} \text{ tps}. \tag{5.16}$$

Kleinere Einheiten sind:

1 Millicurie (1 mCi)	=	$3{,}700 \cdot 10^{7}$	tps
1 Mikrocurie (1 μCi)	=	$3{,}700 \cdot 10^{4}$	tps
1 Nanocurie (1 nCi)	=	37	tps
1 Picocurie (1 pCi)	=	0,037	tps

1 Curie ist eine sehr hohe Aktivität, die in den meisten Fällen in einem sogenannten heißen Laboratorium gehandhabt werden muß. Für die Anwendung der Radioaktivität bei chemischen Untersuchungen sind Aktivitäten von 1 μCi oder weniger völlig ausreichend, in vielen Fällen sogar Aktivitäten von der Größenordnung 1 nCi. Aktivitäten von der Größenordnung 1 nCi sind noch ohne besonderen Aufwand meßbar; 10 bis 100 nCi können mit den üblichen Detektoren, z. B. einem Geiger-Müller-Zähler, mit großer Genauigkeit bestimmt werden. Um Aktivitäten von der Größenordnung 1 pCi zu messen, bedarf es jedoch eines größeren technischen Aufwandes.

Gl. (5.14) enthält eine Beziehung zwischen der Zahl der vorhandenen radioaktiven Atome, ihrer Halbwertzeit und ihrer Aktivität; diese Beziehung erlaubt es z. B., aus der Aktivität und der Halbwertzeit die Zahl der radioaktiven Atome N bzw. ihre Masse m zu bestimmen:

$$N = \frac{A}{\lambda} = \frac{A}{\ln 2} \cdot t_{1/2} \tag{5.17}$$

bzw.

$$m = \frac{N \cdot \mathrm{M}}{\mathrm{N_L}} = \frac{A \cdot \mathrm{M}}{\mathrm{N_L} \cdot \ln 2} \cdot t_{1/2}; \tag{5.18}$$

M ist die Nuklidmasse und $\mathrm{N_L}$ die Loschmidtsche Zahl. Beispielsweise erhält man für die Zahl der Atome N und für die Masse m von 1 Ci P–32 ($t_{1/2} = 14{,}3\,\mathrm{d}$):

$$N = \frac{3{,}7 \cdot 10^{10}}{\ln 2} \cdot 14{,}3 \cdot 24 \cdot 3600 = 6{,}6 \cdot 10^{16}$$

bzw.

$$m = \frac{32 \cdot 6{,}6 \cdot 10^{16}}{6{,}02 \cdot 10^{23}} = 3{,}5 \cdot 10^{-6}\,\mathrm{g}\,(3{,}5\,\mu\mathrm{g}).$$

Eine weitere wichtige Größe ist die spezifische Aktivität A_S. Diese ist auf die Masseneinheit des betreffenden Elements bezogen, d. h. auf die Summe der Massen an radioaktiven und inaktiven Isotopen des Elementes:

$$A_\mathrm{S} = \frac{A}{m} \left[\frac{\mathrm{Ci}}{\mathrm{g}}\right]. \tag{5.19}$$

In manchen Fällen bezieht man auch auf die Zahl der Mole der betreffenden chemischen Verbindung:

$$A_S = \frac{A}{n} \left[\frac{\text{Ci}}{\text{Mol}}\right]; \tag{5.20}$$

so wird beispielsweise die spezifische Aktivität von ^{14}C-markiertem Benzol meist in der Einheit mCi/mMol = Ci/Mol angegeben.

Für den zeitlichen Abfall der spezifischen Aktivität gilt in Analogie zur Gl. (5.15)

$$A_S = A_{S_0} \cdot e^{-\lambda t} = A_{S_0} \left(\frac{1}{2}\right)^{t/t_{1/2}}. \tag{5.21}$$

Die spezifische Aktivität hat für den Chemiker große praktische Bedeutung. Je nach der Aufgabenstellung werden Substanzen mit einer bestimmten spezifischen Aktivität benötigt; nur in Ausnahmefällen sind sehr hohe spezifische Aktivitäten erforderlich. Dies muß bei der Produktion radioaktiver Nuklide durch Kernreaktionen und bei der Darstellung markierter Verbindungen berücksichtigt werden.

Während in der Chemie im allgemeinen Angaben über die Menge eines Elementes oder einer Verbindung genügen, sind in der Kernchemie und bei den Anwendungen der Radioaktivität zusätzlich Angaben über die Aktivität wichtig. Durch gleichzeitige Messung der Masse und der Aktivität können Aussagen über stoffliche Vorgänge gewonnen werden. Weitere interessante Möglichkeiten ergeben sich durch Mehrfachmarkierung einer Verbindung, z. B. mit C–14 und mit H–3 (T); in diesem Falle muß man zwei oder mehr verschiedene spezifische Aktivitäten unterscheiden (z. B. die spezifische Aktivität des C–14 und des T), die sich bei einer stofflichen Umsetzung unabhängig voneinander verändern können.

5.5. Impulsrate

Die Aktivität ist eine Stoffeigenschaft, die mit einem Detektor (Meßplatz) gemessen werden kann. Die dazugehörige Meßgröße ist die Impulsrate I, die über die Zählausbeute η mit der Aktivität verknüpft ist:

$$I = \eta \cdot A \qquad (\eta \leq 1). \tag{5.22}$$

Die Zählausbeute η gibt an, welcher Bruchteil der Zerfallsprozesse gemessen wird. Sie ist abhängig von der Art der Strahlung, ihrer Energie, der Art des Detektors, der geometrischen Anordnung, der Selbstabsorption der Strahlung im Präparat und der Rückstreuung der Strahlung. Außerdem geht die Häufigkeit des vom Detektor erfaßten Zerfallsprozesses ein, die aus dem Zerfallschema entnommen werden kann, z. B. die Häufigkeit einer bestimmten γ-Linie oder die Häufigkeit des β-Zerfalls, bezogen auf die Summe der Zerfallsprozesse des betreffenden Nuklids. In den meisten Fällen bewegt sich die Zählausbeute innerhalb der Grenzen $0{,}01 < \eta < 1$. Zur Bestimmung von η verwendet man Standardpräparate, deren Aktivität genau bekannt ist (vgl. Abschn. 6.5.3.). Die vom Detektor registrierte Impulsrate I' setzt sich zusammen aus der Impulsrate I des Präparats und dem Untergrund u,

$$I' = I + u = \eta \cdot A + u \tag{5.22a}$$

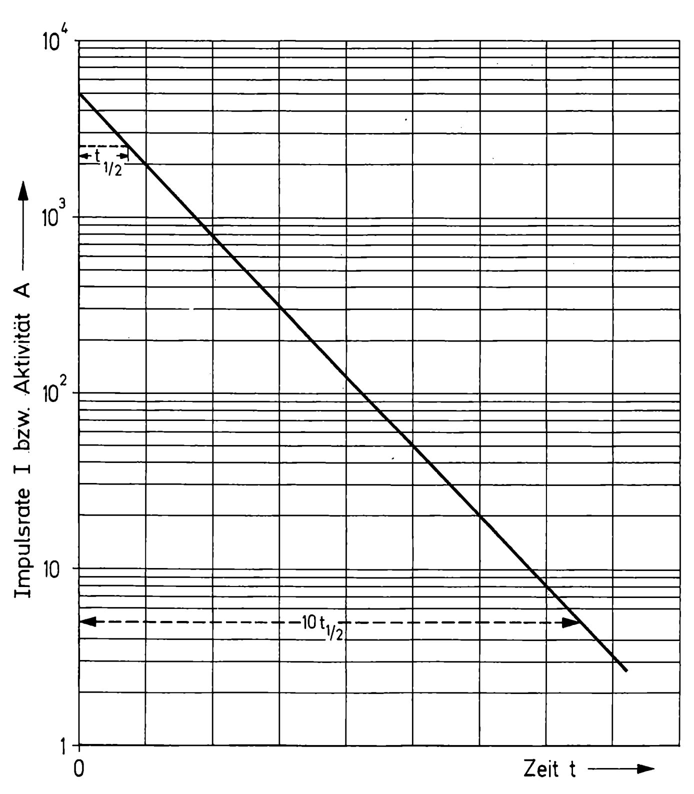


Abb. (5–3) Impulsrate I bzw. Aktivität A als Funktion der Zeit—Bestimmung einer Halbwertzeit.

In der Kernchemie begnügt man sich aus Gründen der Zweckmäßigkeit im allgemeinen mit Vergleichsmessungen; d. h. man mißt die Präparate stets mit dem gleichen Detektor und bei der gleichen Meßanordnung, so daß η konstant ist. Zur Kontrolle der Zählausbeute — d. h. zur Prüfung auf ihre Konstanz — genügt ein Vergleichspräparat, das bei gleicher Meßanordnung stets die gleiche Impulsrate liefert und bei einer Änderung der Zählausbeute η eine Umrechnung der Impulsraten ermöglicht.

Die gebräuchlichste Einheit der Impulsrate ist 1 Impuls pro Minute $= 1$ ipm, weil die Meßdauer meist in Minuten gerechnet wird. Bei der Umrechnung von der Impulsrate auf die Aktivität muß man die verschiedene Zeiteinheit beachten:

$$I(\text{ipm}) = 60\eta \cdot A(\text{tps}). \tag{5.23}$$

Für die zeitliche Abhängigkeit der Impulsrate gilt analog Gl. (5.15):

$$I = I_0 \cdot e^{-\lambda t} = I_0 \left(\frac{1}{2}\right)^{t/t_{1/2}}, \tag{5.24}$$

sofern bei konstanter Zählausbeute η gemessen wird.

Zeichnet man auf halblogarithmischem Papier die Impulsrate oder die Aktivität als Funktion der Zeit auf, so erhält man eine Gerade (Abb. (5–3)). An dieser Geraden kann man die Halbwertzeit des betreffenden Nuklids abgreifen. Diese graphische Methode zur Bestimmung einer Halbwertzeit wird häufig angewendet. Die Kurve (Abb. (5–3)) nennt man die Zerfallskurve des Radionuklids.

5.6. Mischung mehrerer unabhängig voneinander zerfallender Nuklide

Enthält ein radioaktives Präparat eine Mischung mehrerer unabhängig voneinander zerfallender Nuklide, so gilt für die Impulsrate:

$$\begin{aligned} I = I_1 + I_2 + \ldots &= \eta_1 A_1 + \eta_2 A_2 + \ldots \\ &= \eta_1 \lambda_1 N_1 + \eta_2 \lambda_2 N_2 + \ldots . \end{aligned} \tag{5.25}$$

Sofern nicht zuviele verschiedene Radionuklide vorhanden sind, ist auf rechnerischem oder graphischem Wege eine Auftrennung und Bestimmung der Halbwertzeiten möglich. In Abb.(5–4) ist als Beispiel

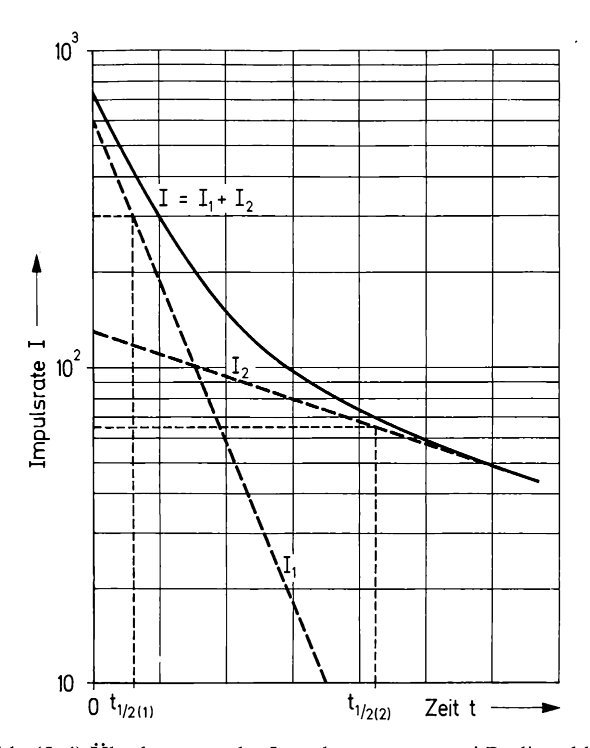


Abb. (5–4) Überlagerung der Impulsraten von zwei Radionukliden.

der zeitliche Verlauf der Impulsrate I für ein Gemisch aus zwei Radionukliden aufgetragen. Nach einer gewissen Zeit ist das Nuklid 1 praktisch zerfallen; dann wird nur noch der Abfall der Aktivität des Nuklids 2 mit der Halbwertzeit $t_{1/2}$ (2) beobachtet. Extrapoliert man die Kurve für den Zerfall des Nuklids 2, so erhält man I_2 als Funktion der Zeit. Subtrahiert man nun I_2 von der Gesamtimpulsrate I, so erhält

man nach Gl. (5.25) I_1 als Funktion der Zeit. Auf diese Weise kann in vielen praktisch wichtigen Fällen eine komplexe Zerfallskurve zerlegt werden.

Die Aufzeichnung der Impulsrate nach Abb. (5–3) bzw. Abb. (5–4) ist auch wichtig, wenn man ein Präparat auf radiochemische Reinheit prüfen will. Ist das Präparat radiochemisch rein, so erhält man eine Kurve nach Abb. (5–3); d. h. die Zerfallskurve folgt über viele Größenordnungen einer Geraden. Ist das Präparat nicht radiochemisch rein, so erhält man eine Kurve nach Abb. (5–4); die Zerfallskurve läßt dann

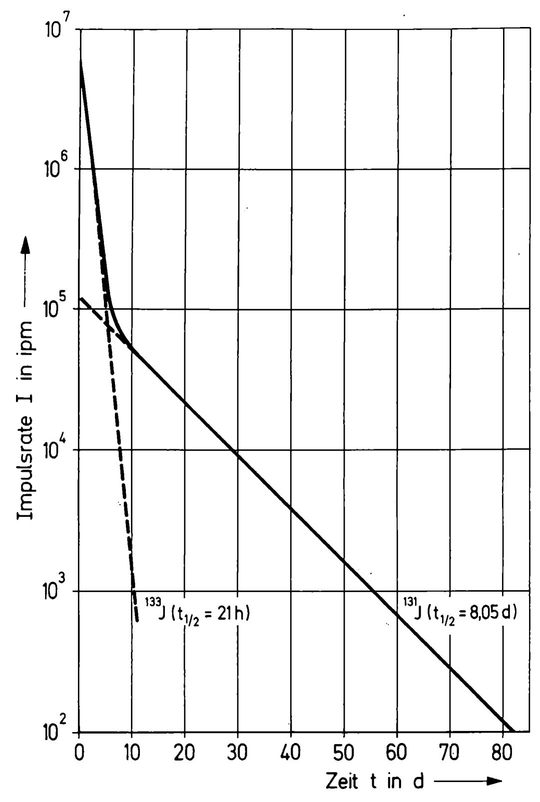


Abb. (5–5) Verunreinigung durch ein kurzlebiges Radionuklid (Beispiel: ^{133}J in ^{131}J).

die Überlagerung mehrerer Geraden erkennen. Im Falle der Verunreinigung durch ein Nuklid mit kurzer Halbwertzeit beobachtet man eine kurzlebige Aktivität am Anfang der Zerfallskurve (Abb. (5–5)); liegt ein langlebiges Nuklid als Verunreinigung vor (dies ist in der Praxis der wichtigere Fall), so beobachtet man eine langlebige Aktivität am Ende der Zerfallskurve (Abb. (5–6)).

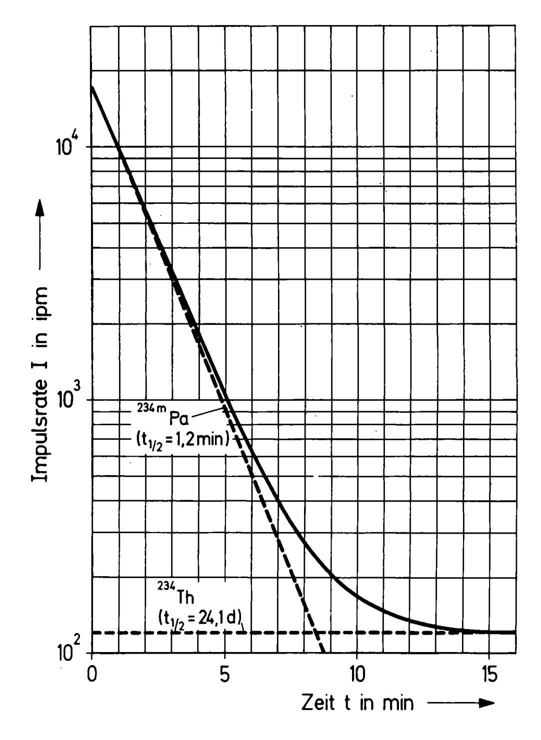


Abb. (5–6) Verunreinigung durch ein langlebiges Radionuklid (Beispiel: ^{234}Th in ^{234m}Pa).

Wenn das radioaktive Präparat viele verschiedene Radionuklide enthält, ist es meistens nicht mehr möglich, die Zerfallskurve auf graphischem Wege zu zerlegen. Dann ist eine vorausgehende chemische Trennung erforderlich. Im Anschluß an die chemische Trennung können die Zerfallskurven für die einzelnen Fraktionen getrennt aufgenommen werden.

5.7. Radioaktives Gleichgewicht

In diesem und in den folgenden Abschnitten wird der wichtige Fall besprochen, daß mehrere radioaktive Nuklide in einer genetischen Beziehung stehen:

$$\text{Nuklid 1} \rightarrow \text{Nuklid 2} \rightarrow \text{Nuklid 3.} \qquad (5.26)$$

Um diese genetische Beziehung zu charakterisieren, spricht man von Mutternuklid und Tochternuklid (kurz „Mutter" und „Tochter").

Für die Nettobildungsrate des Tochternuklids gilt:

$$\frac{dN_2}{dt} = -\frac{dN_1}{dt} - \lambda_2 N_2 = \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2. \tag{5.27}$$

Der erste Term auf der rechten Seite ist die Bildungsrate des Nuklids 2, die gleich der Zerfallsrate des Nuklids 1 ist. Der zweite Term auf der rechten Seite ist die Zerfallsrate des Nuklids 2. Führt man das Zerfallsgesetz für das Nuklid 1 ein,

$$N_1 = N_1^0 e^{-\lambda_1 t}, \tag{5.28}$$

so erhält man die Gleichung

$$\frac{dN_2}{dt} + \lambda_2 N_2 - \lambda_1 N_1^0 e^{-\lambda_1 t} = 0. \tag{5.29}$$

Dies ist eine lineare Differentialgleichung 1. Ordnung; sie beschreibt die Beziehung zwischen einem Mutternuklid 1 und einem Tochternuklid 2. Die Lösung dieser Differentialgleichung lautet

$$N_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_1^0 (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}) + N_2^0 e^{-\lambda_2 t}; \tag{5.30}$$

N_2^0 ist die Zahl der zur Zeit $t = 0$ vorhandenen Atome des Nuklids 2. $e^{-\lambda_1 t}$ beschreibt die Bildung des Tochternuklids aus dem Mutternuklid, $e^{-\lambda_2 t}$ den Zerfall der aus dem Mutternuklid entstehenden Atome des Tochternuklids und $N_2^0 \cdot e^{-\lambda_2 t}$ den Zerfall der zur Zeit $t = 0$ vorhandenen Atome des Tochternuklids. Geht man davon aus, daß zur Zeit $t = 0$ eine quantitative Trennung stattgefunden hat, so ist $N_2^0 = 0$, und man erhält die vereinfachte Gleichung

$$N_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_1^0 (e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}). \tag{5.31}$$

Klammert man $e^{-\lambda_1 t}$ aus, so folgt

$$N_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_1^0 e^{-\lambda_1 t} [1 - e^{-(\lambda_2 - \lambda_1)t}] \tag{5.32}$$

bzw. mit Gl. (5.28)

$$N_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_1 \, [1 - e^{-(\lambda_2 - \lambda_1)t}]. \tag{5.33}$$

Diese Gleichung beschreibt die Einstellung des radioaktiven Gleichgewichts als Funktion der Zeit im Anschluß an eine quantitative Abtrennung des Tochternuklids vom Mutternuklid. Das radioaktive Gleichgewicht ist erreicht, wenn

$$N_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_1 \tag{5.34}$$

ist — d. h. wenn das Verhältnis der Zahl der Atome N_2/N_1 konstant geworden ist. Führt man an Stelle der Zerfallskonstanten die Halbwertzeiten ein,

$$\lambda_2 - \lambda_1 = \ln 2 \left(\frac{1}{t_{1/2}(2)} - \frac{1}{t_{1/2}(1)} \right) = \ln 2 \frac{t_{1/2}(1) - t_{1/2}(2)}{t_{1/2}(1) \cdot t_{1/2}(2)}, \tag{5.35}$$

so geht Gl. (5.33) über in

$$N_2 = \frac{\dfrac{t_{1/2}(2)}{t_{1/2}(1)}}{1 - \dfrac{t_{1/2}(2)}{t_{1/2}(1)}} N_1 \left[1 - \left(\frac{1}{2}\right)^{\left(1 - \frac{t_{1/2}(2)}{t_{1/2}(1)}\right) \frac{t}{t_{1/2}(2)}} \right]. \tag{5.36}$$

Die Einstellung des radioaktiven Gleichgewichtes ist in Abb. (5–7) in Abhängigkeit von der Zeit für verschiedene Quotienten der Halbwertzeiten dargestellt; als Einheit der Zeitskala ist die Halbwertzeit des Tochternuklids gewählt. Man erkennt, daß einerseits für die Einstellung des radioaktiven Gleichgewichts die Halbwertzeit des Tochternuklids wichtig ist, daß sich andererseits aber das Gleichgewicht um so langsamer einstellt, je ähnlicher die Halbwertzeiten sind.

Die Bezeichnung radioaktives Gleichgewicht hat sich eingebürgert zur Charakterisierung der Tatsache, daß ein gesetzmäßiger Zusammenhang zwischen der Menge bzw. der Aktivität eines Tochternuklids und eines Mutternuklids besteht; und zwar ist das Verhältnis der Mengen bzw. der Aktivitäten konstant. An dieser Stelle sei darauf hingewiesen, daß es sich bei dem radioaktiven Gleichgewicht nicht um

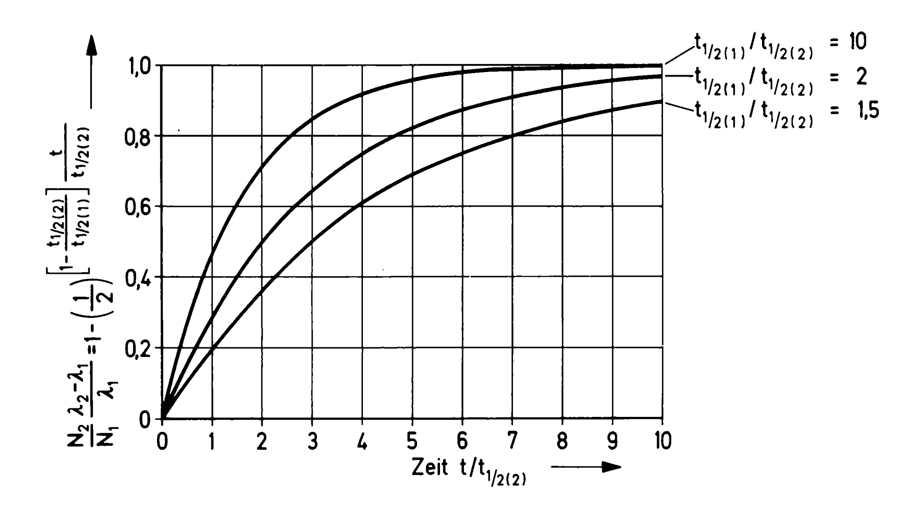


Abb. (5–7) Einstellung des radioaktiven Gleichgewichts als Funktion der Zeit nach Gl. (5.36).

ein Gleichgewicht im Sinne der Thermodynamik bzw. Reaktionskinetik handelt. Das radioaktive Gleichgewicht ist nicht reversibel; d. h. es kann nicht von beiden Seiten erreicht werden. Außerdem handelt es sich im allgemeinen nicht um einen stationären Zustand; eine Ausnahme bildet der Grenzfall, daß die Halbwertzeit des Mutternuklids sehr viel größer ist als die Halbwertzeit des Tochternuklids (säkulares Gleichgewicht, Abschn. 5.8.).

Für die weitere Behandlung des radioaktiven Gleichgewichts unterscheidet man zweckmäßigerweise vier verschiedene Fälle:

a) $t_{1/2}(1) \gg t_{1/2}(2)$ — Die Halbwertzeit des Mutternuklids ist sehr viel größer als die Halbwertzeit des Tochternuklids (säkulares Gleichgewicht).
b) $t_{1/2}(1) > t_{1/2}(2)$ — Die Halbwertzeit des Mutternuklids ist zwar größer als die Halbwertzeit des Tochternuklids; der Zerfall des Mutternuklids kann aber nicht vernachlässigt werden (transientes Gleichgewicht).
c) $t_{1/2}(1) < t_{1/2}(2)$ — Die Halbwertzeit des Mutternuklids ist kleiner als die Halbwertzeit des Tochternuklids; in diesem Falle stellt sich kein radioaktives Gleichgewicht ein.
d) $t_{1/2}(1) \lesssim\gtrsim t_{1/2}(2)$ — Die Halbwertzeiten des Mutternuklids und des Tochternuklids sind ähnlich.

Diese verschiedenen Möglichkeiten werden in den folgenden Abschnitten behandelt.

Wenn das Tochternuklid stabil ist, so folgt mit $\lambda_2 = 0$ aus Gl. (5.31)

$$N_2 = N_1^0 (1 - e^{-\lambda_1 t}) \tag{5.37}$$

und daraus mit Gl. (5.28)

$$N_2 = N_1^0 - N_1 = N_1 (e^{\lambda_1 t} - 1). \tag{5.38}$$

Diese Gleichungen beschreiben das Anwachsen eines stabilen Tochternuklids durch Zerfall eines radioaktiven Mutternuklids als Funktion der Zeit.

5.8. Säkulares Gleichgewicht

Die Halbwertzeit des Mutternuklids sei sehr viel größer als die Halbwertzeit des Tochternuklids, $t_{1/2}(1) \gg t_{1/2}(2)$ bzw. $\lambda_1 \ll \lambda_2$; zur Zeit $t = 0$ sei eine quantitative Trennung erfolgt. In diesem Falle folgt aus Gl. (5.33)

$$N_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2} N_1 (1 - e^{-\lambda_2 t}). \tag{5.39}$$

Da die Zerfallskonstante des Nuklids 1 sehr viel kleiner ist als die Zerfallskonstante des Nuklids 2, ist die Zahl der Atome des Nuklids 1 praktisch konstant, d. h. $N_1^0 = N_1$. Für die Einstellung des radioaktiven Gleichgewichts ist nur die Halbwertzeit des Tochternuklids

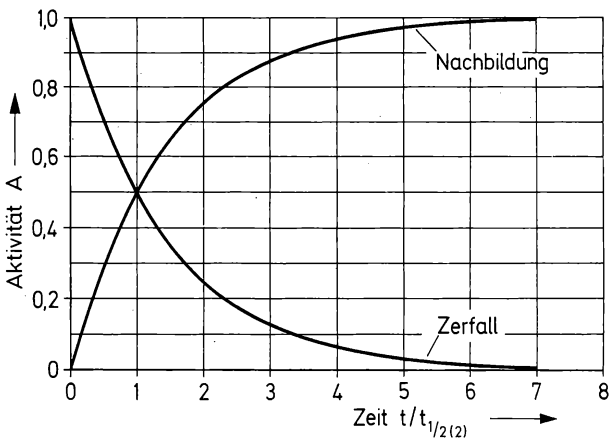


Abb. (5–8) Zerfall des abgetrennten Tochternuklids und Nachbildung des Tochternuklids aus dem Mutternuklid im Falle des säkularen Gleichgewichts.

maßgebend. Wie Abb. (5–8) zeigt, bildet sich das Tochternuklid 2 mit der gleichen Gesetzmäßigkeit in dem Mutternuklid 1 nach, mit der es zerfällt, wenn es von dem Mutternuklid isoliert wird — vgl. die Gln. (5.39) und (5.8). Zeichnet man den Verlauf der Gesamtaktivität $A = A_1 + A_2$ und der Einzelaktivitäten A_1, A_2 (abgetrennt) sowie A_2 (in 1) in einem halblogarithmischen Diagramm auf, so erhält man Abb. (5–9). Die Gesamtaktivität $A = A_1 + A_2$ und die Einzelaktivität

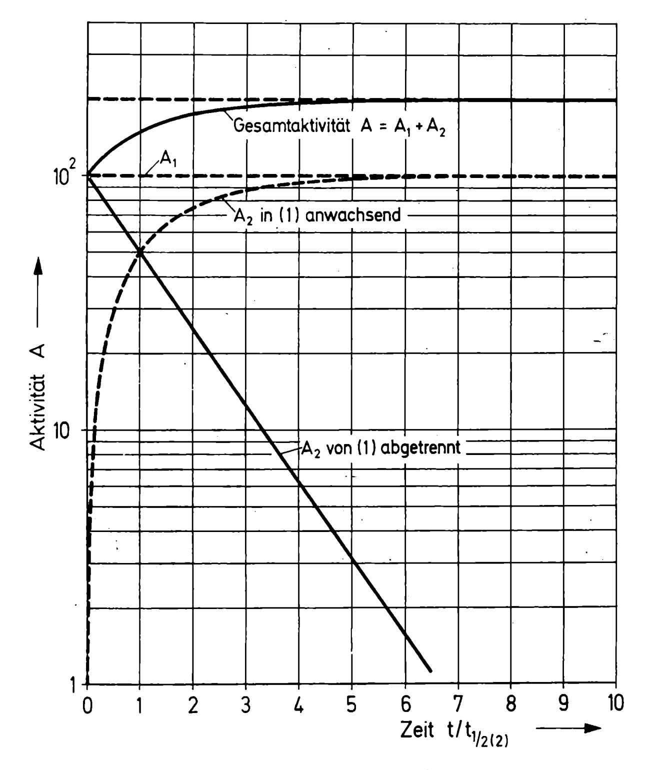


Abb. (5–9) Säkulares Gleichgewicht — Gesamtaktivität und Einzelaktivitäten als Funktion der Zeit.

A_2 können nach der Trennung als Funktion der Zeit gemessen werden. Daraus werden durch Differenzbildung die Einzelaktivität A_1 und das Anwachsen der Tochteraktivität A_2 in (1) berechnet.

Nach hinreichend langer Zeit — praktisch nach etwa 10 Halbwertzeiten des Tochternuklids — ist das radioaktive Gleichgewicht eingestellt; dann gilt

$$\frac{N_2}{N_1} = \frac{\lambda_1}{\lambda_2} \text{ bzw. } \frac{N_2}{N_1} = \frac{t_{1/2}(2)}{t_{1/2}(1)}. \tag{5.40}$$

Daraus folgt mit Gl. (5.14) für die Aktivitäten

$$A_1 = A_2; \tag{5.41}$$

das heißt, im radioaktiven Gleichgewicht werden innerhalb eines bestimmten Zeitintervalls ebensoviele Atome des Nuklids 2 nachgebildet, wie zerfallen. Die Zahl der Atome und die Aktivität des Mutternuklids sowie des Tochternuklids bleiben konstant. Man spricht deshalb von einem säkularen — d. h. über Jahrhunderte andauernden — Gleichgewicht.

Die Gln. (5.40) und (5.41) ermöglichen einige wichtige Anwendungen. Dabei ist es von großer praktischer Bedeutung, daß diese Gleichungen nicht nur für das unmittelbar folgende Tochternuklid (2) gelten, sondern auch für ein beliebiges radioaktives Folgeprodukt in der Zerfallsreihe, allerdings immer unter der Voraussetzung, daß ein säkulares radioaktives Gleichgewicht vorliegt (die allgemeine Beziehung wird in Abschn. 5.12. abgeleitet). In den folgenden Beispielen werden einige Anwendungen besprochen:

a) Bestimmung großer Halbwertzeiten aus dem Mengenverhältnis der beiden Radionuklide und der Halbwertzeit des Tochternuklids. Zum Beispiel findet man pro Kilogramm Uran im radioaktiven Gleichgewicht 0,34 mg Ra–226 ($t_{1/2} = 1602$ a); daraus berechnet man die Halbwertzeit des U–238 zu

$$t_{1/2}(1) = \frac{N_1}{N_2} \cdot t_{1/2}(2) = \frac{10^6}{0{,}34} \cdot \frac{226}{238} \cdot 1602 = 4{,}5 \cdot 10^9\,\text{a}. \tag{5.42}$$

Große Halbwertzeiten können nur auf diesem Wege bestimmt werden, weil der zeitliche Abfall der Aktivität nicht verfolgt werden kann. Die Halbwertzeit des Ra–226 kann in ähnlicher Weise ermittelt werden, z. B. durch Messung der im radioaktiven Gleichgewicht vorhandenen Menge des Tochternuklids Rn–222 in einer Ionisationskammer.

b) Berechnung des Mengenverhältnisses von Radionukliden, die im radioaktiven Gleichgewicht nebeneinander vorliegen:

$$\frac{m_2}{m_1} = \frac{\mathrm{M}_2 \cdot N_2}{\mathrm{M}_1 \cdot N_1} = \frac{\mathrm{M}_2}{\mathrm{M}_1}\,\frac{t_{1/2}(2)}{t_{1/2}(1)} \tag{5.43}$$

(M_1 bzw. M_2 sind die Nuklidmassen). Zum Beispiel erhält man für

die Menge des Ra–228 in 1 g Th–232

$$m_2 = m_1 \frac{M_2}{M_1} \frac{t_{1/2}(2)}{t_{1/2}(1)} = \frac{228}{232} \frac{6,7}{1,41 \cdot 10^{10}} = 4,7 \cdot 10^{-10}\,\text{g}.$$

Diese Berechnungen sind von Bedeutung bei der chemischen Aufbereitung von Uranerzen und Thoriumerzen; sie ermöglichen Angaben über die Mengen der anfallenden radioaktiven Abfallprodukte.

c) Berechnung der Menge der Muttersubstanz aus der Aktivität eines Folgeproduktes (bei bekannten Halbwertzeiten). Zum Beispiel kann man den Urangehalt in einem Mineral bestimmen, indem man die Aktivität des Th–234 oder Pa–234m mißt; oder man kann mit sehr hoher Empfindlichkeit den Radiumgehalt einer Probe bestimmen durch Messung der Aktivität der im Gleichgewicht vorhandenen Emanation ($^{226}\text{Ra} \xrightarrow{\alpha} {}^{222}\text{Rn}$). Findet man beispielsweise nach der chemischen Trennung in der Fraktion, die das Protactinium enthält, eine Aktivität an Pa–234m von 1 nCi, so berechnet man daraus für die Menge des U–238 in der Analysenprobe mit Hilfe der Gln. (5.14) und (5.41)

$$m_1 = \frac{M_1}{N_L} \cdot \frac{A_2}{\ln 2} t_{1/2}(1) \tag{5.44}$$

bzw.

$$m_1 = \frac{238 \cdot 37 \cdot 4,51 \cdot 10^9 \cdot 365 \cdot 24 \cdot 3600}{6,023 \cdot 10^{23} \cdot 0,693} = 3,0\,\text{mg U–238}.$$

Auf der Anwendung dieser Überlegungen beruht eine Reihe von Analysenverfahren zur Bestimmung von Uran, Radium oder Thorium.

d) Durch Einwiegen einer bestimmten Menge einer langlebigen Muttersubstanz kann die absolute Aktivität eines Tochternuklids vorgegeben werden. Dies stellt eine Umkehrung der unter c) beschriebenen Anwendung dar. Wiegt man z. B. 1 mg U–238 ein (das natürliche Uran besteht zu 99,27% aus U–238, zu 0,72% aus U–235 und zu 0,0057% aus U–234), so erhält man ein Standardpräparat, dessen Aktivität an Pa–234m bekannt ist. Wie man aus Gl. (5.40) berechnen kann, sendet dieses Präparat 740 β^--Teilchen pro Mi-

nute aus; die β^--Strahlung von Pa–234m läßt sich besonders gut nachweisen, weil sie sehr energiereich ist (2,29 MeV). Die α-Strahlung des U–238, des U–235 und des U–234 sowie die schwache β^--Strahlung des Th–234 können durch ein dünnes Aluminiumblech herausgefiltert werden. Mit Hilfe solcher Standardpräparate kann die Zählausbeute η einer Zählanordnung nach Gl. (5.22) bestimmt werden.

5.9. Transientes Gleichgewicht

Von einem transienten radioaktiven Gleichgewicht spricht man dann, wenn der Zerfall des Mutternuklids nicht mehr vernachlässigt werden kann, so wie beim säkularen radioaktiven Gleichgewicht. In diesem Falle ist $t_{1/2}(1) > t_{1/2}(2)$ bzw. $\lambda_1 < \lambda_2$.

Zur Zeit $t=0$ sei wiederum eine quantitative Trennung erfolgt; dann gilt für die Einstellung des radioaktiven Gleichgewichtes als Funktion der Zeit Gl. (5.31) bzw. (5.32)

$$N_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_1^0 \, e^{-\lambda_1 t}\left(1 - e^{-(\lambda_2 - \lambda_1)t}\right).$$

Der Ausdruck vor der Klammer beschreibt den Zerfall des Mutternuklids. Für die Einstellung des radioaktiven Gleichgewichts ist nun nicht mehr die Halbwertzeit des Tochternuklids allein maßgebend, sondern die Differenz der Zerfallskonstanten. Das radioaktive Gleichgewicht ist erreicht, wenn der Ausdruck in der Klammer gleich 1 ist — praktisch nach der Zeit $t > 10 \cdot \frac{t_{1/2}(1) \cdot t_{1/2}(2)}{t_{1/2}(1) - t_{1/2}(2)}$ (vgl. dazu Gl. (5.36) und Abb. (5–7)).

Der Verlauf der Gesamtaktivität $A = A_1 + A_2$, der Einzelaktivitäten A_1 und A_2 nach der Trennung sowie der Anstieg der Aktivität des Tochternuklids A_2 im Mutternuklid (1) sind für den Fall des transienten radioaktiven Gleichgewichts in Abb. (5–10) aufgezeichnet.

Sobald das radioaktive Gleichgewicht eingestellt ist, gilt

$$N_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_1^0 \, e^{-\lambda_1 t} \tag{5.45}$$

bzw. unter Berücksichtigung von Gl. (5.8)

$$N_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_1. \tag{5.46}$$

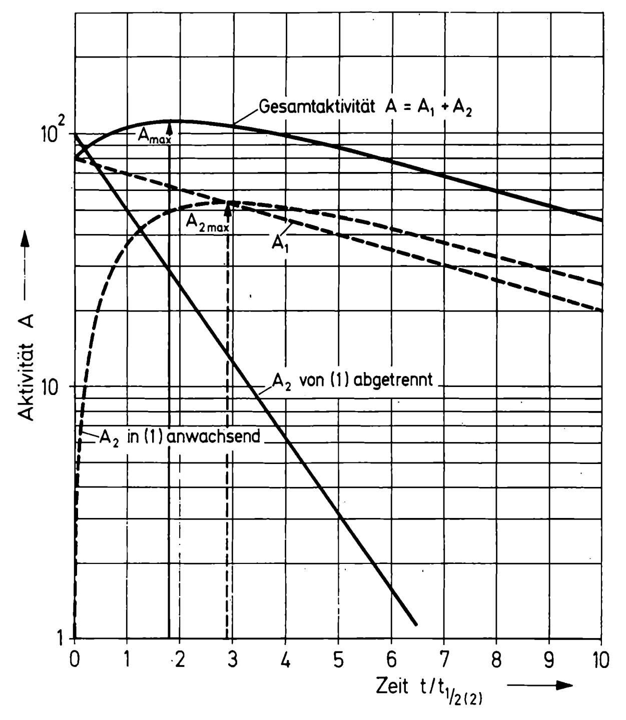


Abb. (5–10) Transientes Gleichgewicht – Gesamtaktivität und Einzelaktivitäten als Funktion der Zeit ($t_{1/2(1)}/t_{1/2(2)} = 5$).

Gl. (5.45) besagt, daß das Gemisch der beiden Nuklide im radioaktiven Gleichgewicht mit der Halbwertzeit des langlebigeren Mutternuklids zerfällt. Das Verhältnis der Zahl der Atome des Tochternuklids zur Zahl der Atome des Mutternuklids beträgt

$$\frac{N_2}{N_1} = \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} \tag{5.47}$$

bzw.

$$\frac{N_2}{N_1} = \frac{t_{1/2}(2)}{t_{1/2}(1) - t_{1/2}(2)}. \tag{5.48}$$

Während im säkularen radioaktiven Gleichgewicht die Aktivitäten des Mutternuklids und des Tochternuklids gleich groß sind ($A_1 = A_2$), ist im transienten radioaktiven Gleichgewicht die Akti-

vität des Mutternuklids kleiner als die Aktivität des Tochternuklids:

$$\frac{A_1}{A_2} = \frac{\lambda_1 N_1}{\lambda_2 N_2} = 1 - \frac{\lambda_1}{\lambda_2} = 1 - \frac{t_{1/2}(2)}{t_{1/2}(1)}. \tag{5.49}$$

In der gleichen Weise wie beim säkularen radioaktiven Gleichgewicht ergeben sich auch im Falle des transienten radioaktiven Gleichgewichts eine Reihe von praktischen Anwendungen. An Stelle von Gl. (5.42) gilt

$$t_{1/2}(1) = t_{1/2}(2)\left(\frac{N_1}{N_2} + 1\right), \tag{5.50}$$

an Stelle von Gl. (5.43)

$$\frac{m_2}{m_1} = \frac{\mathrm{M}_2 N_2}{\mathrm{M}_1 N_1} = \frac{\mathrm{M}_2}{\mathrm{M}_1} \cdot \frac{t_{1/2}(2)}{t_{1/2}(1) - t_{1/2}(2)} \tag{5.51}$$

und an Stelle von Gl. (5.44)

$$m_1 = \frac{\mathrm{M}_1}{\mathrm{N_L}} \frac{A_2}{\ln 2}(t_{1/2}(1) - t_{1/2}(2)). \tag{5.52}$$

5.10. Kurzlebigeres Mutternuklid

Wenn das Mutternuklid kurzlebiger ist als das Tochternuklid — $t_{1/2}(1) < t_{1/2}(2)$ bzw. $\lambda_1 > \lambda_2$ —, so stellt sich kein radioaktives Gleichgewicht ein. In diesem Falle ist die Muttersubstanz aufgezehrt, bevor das Tochternuklid zerfallen ist. Der Verlauf der Gesamtaktivität $A = A_1 + A_2$, der Einzelaktivitäten A_1 und A_2 nach der Trennung sowie der Anstieg der Aktivität des Tochternuklids A_2 im Mutternuklid (1) sind in Abb. (5–11) aufgezeichnet.

Berücksichtigt man, daß $\lambda_1 > \lambda_2$ ist, so erhält man durch Umformung der Gl. (5.31)

$$N_2 = \frac{\lambda_1}{\lambda_1 - \lambda_2} N_1^0 e^{-\lambda_2 t} [1 - e^{-(\lambda_1 - \lambda_2)t}]. \tag{5.53}$$

Wenn der Term $e^{-(\lambda_1 - \lambda_2)t}$ abgeklungen ist ($e^{-(\lambda_1 - \lambda_2)t} \ll 1$), wird nur

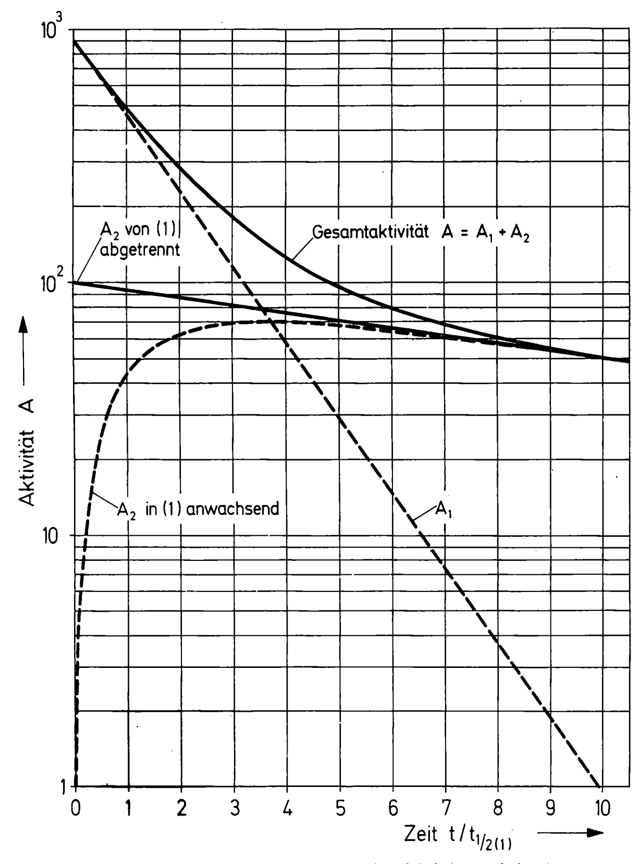


Abb. (5–11) Mutternuklid ist kurzlebiger — kein Gleichgewicht ($t_{1/2(1)}/t_{1/2(2)} = 0{,}1$).

noch der Zerfall des Tochternuklids beobachtet ($e^{-\lambda_2 t}$); die Zahl der Atome des Tochternuklids N_2 ist auch hier proportional der Zahl N_1^0 der nach der Trennung vorhandenen Atome des Mutternuklids. Ein Gleichgewicht wird nicht erreicht.

5.11. Ähnliche Halbwertzeiten

Bei der Kernspaltung tritt unter den Spaltprodukten häufig der Fall auf, daß das Mutternuklid und das Tochternuklid ähnliche Halbwertzeiten besitzen — $t_{1/2}(1) \approx t_{1/2}(2)$ bzw. $\lambda_1 \approx \lambda_2$. Ist die Halbwertzeit des Mutternuklids größer als die Halbwertzeit des Tochternuklids ($t_{1/2}(1) > t_{1/2}(2)$), so stellt sich allmählich das transiente radioaktive Gleichgewicht ein (vgl. Abschn. 5.9.). Der Aktivitätsverlauf ist für das Beispiel des radioaktiven Gleichgewichts zwi-

schen Zr–95 ($t_{1/2}$=65 d) und Nb–95 ($t_{1/2}$=35 d) in Abb. (5–12) auf-

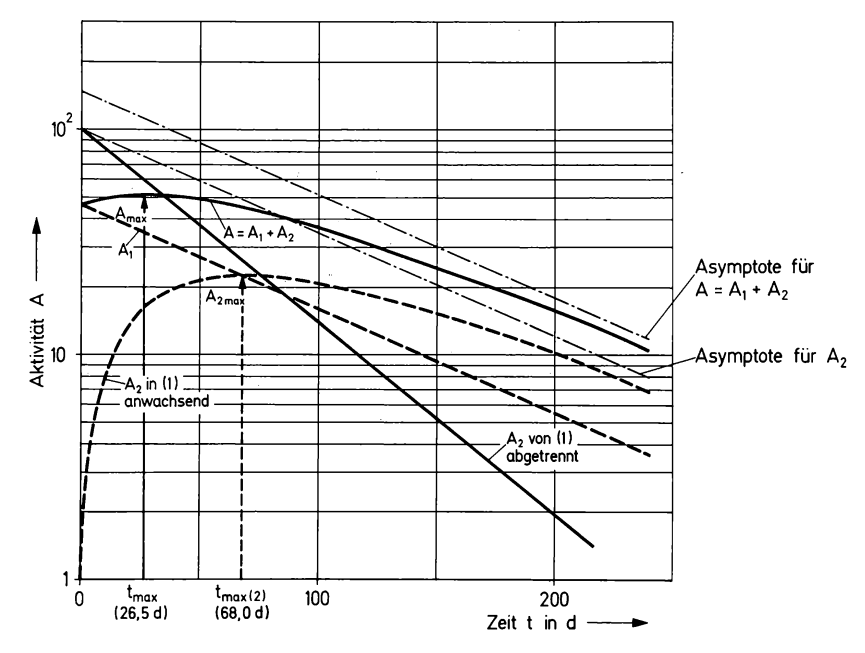


Abb. (5–12) Ähnliche Halbwertzeiten — Einstellung des radioaktiven Gleichgewichts

$$^{95}_{40}Zr \xrightarrow[65\,d]{\beta^-} {}^{95}_{41}Nb \xrightarrow[35\,d]{\beta^-} {}^{95}_{42}Mo \; (t_{1/2(1)}/t_{1/2(2)} = 1{,}86).$$

gezeichnet. Die Zerfallskurve des langlebigeren Nuklids wird nur sehr langsam erreicht — d. h. dann, wenn die Gesamtaktivität schon weitgehend abgeklungen ist. Ist die Halbwertzeit des Mutternuklids kleiner als die Halbwertzeit des Tochternuklids ($t_{1/2}(1) < t_{1/2}(2)$), so wird kein radioaktives Gleichgewicht erreicht (vgl. Abschn. 5.10.).

In diesem Abschnitt sollen die beiden folgenden praktisch wichtigen Fragen beantwortet werden:

a) Wie lange muß man nach der Trennung warten, bis die Zerfallskurve des langlebigeren Nuklids beobachtet wird?

b) Zu welchem Zeitpunkt nach der Trennung wird die maximale Aktivität des Tochternuklids erreicht?

Zu Frage a): Aus den Gln. (5.32) bzw. (5.53) folgt, daß der Term $e^{-(\lambda_1 - \lambda_2)t}$ abgeklungen sein muß, wenn man die Zerfallskurve des langlebigeren Nuklids messen will. In der Praxis möchte man nicht beliebig lange warten, sondern man wird einen Fehler ε in Kauf nehmen,

der gegeben ist durch die Beziehungen

$$\varepsilon = e^{-(\lambda_2 - \lambda_1)t} \text{ für } \lambda_1 < \lambda_2$$

bzw. (5.54)

$$\varepsilon = e^{-(\lambda_1 - \lambda_2)t} \text{ für } \lambda_1 > \lambda_2.$$

Nach Gl. (5.35) ist

$$e^{-(\lambda_2 - \lambda_1)t} = \left(\frac{1}{2}\right)^{\frac{t_{1/2}(1) - t_{1/2}(2)}{t_{1/2}(1) \cdot t_{1/2}(2)} \cdot t}.$$

Damit folgt aus Gl. (5.54) für die Zeit nach der Trennung, zu der die Zerfallskurve des langlebigeren Nuklids mit einem Fehler $\leqslant \varepsilon$ beobachtet werden kann:

$$t \geqslant \frac{\lg 1/\varepsilon}{\lg 2} \cdot \frac{t_{1/2}(1) \cdot t_{1/2}(2)}{t_{1/2}(1) - t_{1/2}(2)} \text{ für } t_{1/2}(1) > t_{1/2}(2) \text{ (Mutternuklid langlebiger)}$$

bzw. (5.55)

$$t \geqslant \frac{\lg 1/\varepsilon}{\lg 2} \cdot \frac{t_{1/2}(1) \cdot t_{1/2}(2)}{t_{1/2}(2) - t_{1/2}(1)} \text{ für } t_{1/2}(1) < t_{1/2}(2) \text{ (Tochternuklid langlebiger).}$$

Z. B. zerfällt das J–135, das in den Spaltprodukten des Urans vorkommt, in folgender Weise:

$$^{135}\text{J} \xrightarrow[6{,}7\,\text{h}]{\beta^-} {}^{135}\text{Xe} \xrightarrow[9{,}2\,\text{h}]{\beta^-} {}^{135}\text{Cs};$$

d. h. J–135 und Xe–135 besitzen ähnliche Halbwertzeiten. Fragt man nach der Zeit, die man warten muß, bis die Zerfallskurve des Xe–135 (bei gleicher Zählausbeute für Xe–135 und J–135) mit einem Fehler von 1% beobachtet werden kann, so folgt aus Gl. (5.55)

$$t = \frac{\lg 100}{\lg 2} \cdot \frac{6{,}7 \cdot 9{,}2}{2{,}5}\,\text{h} = 164\,\text{h}.$$

Dies ist im Hinblick auf die Halbwertzeit des Xe–135 eine sehr lange

Zeit; denn nach 164 h ist die Aktivität des Xe–135 bereits um etwa 5 Größenordnungen abgesunken.

Zu Frage b): Zur Beantwortung der Frage, wann die maximale Aktivität des Tochternuklids nach der Trennung erreicht wird, differenziert man Gl. (5.31) nach der Zeit t und setzt den Differentialquotienten gleich Null. Auf diese Weise erhält man

$$t_{max}(2) = \frac{1}{\lambda_2 - \lambda_1} \ln \frac{\lambda_2}{\lambda_1} \tag{5.56}$$

bzw.

$$t_{max}(2) = 3{,}32 \frac{t_{1/2}(1) \cdot t_{1/2}(2)}{t_{1/2}(1) - t_{1/2}(2)} \lg_{10} \frac{t_{1/2}(1)}{t_{1/2}(2)}. \tag{5.57}$$

In diesem Maximum schneidet die Kurve für A_1 die Kurve für A_2 (vgl. Abbn. (5–10) bis (5–12)). Für das obige Beispiel (Zerfall des J–135) resultiert

$$t_{max}(2) = 3{,}32 \frac{6{,}7 \cdot 9{,}2}{2{,}5} \lg_{10} \frac{9{,}2}{6{,}7} = 11{,}3\,\mathrm{h};$$

d. h. die maximale Aktivität des Tochternuklids Xe–135 wird nach 11,3 h erreicht.

5.12. Mehrere aufeinanderfolgende Umwandlungen

In den vorausgehenden Abschnitten (5.7. bis 5.11.) wurde das radioaktive Gleichgewicht behandelt, das sich nach Gl. (5.26) zwischen einem Mutternuklid (1) und einem Tochternuklid (2) einstellt. Diese Betrachtung kann verallgemeinert und auf eine größere Zahl von Nukliden ausgedehnt werden, die in einem genetischen Zusammenhang stehen:

$$(1) \rightarrow (2) \rightarrow (3) \rightarrow (4) \; \ldots . \rightarrow (n). \tag{5.58}$$

Das radioaktive Gleichgewicht, das sich zwischen einer Vielzahl von radioaktiven Nukliden durch aufeinanderfolgende Kernumwandlungen einstellt, kann ebenso behandelt werden wie das radioaktive Gleichgewicht zwischen zwei Nukliden. In Analogie zu den in

Abschnitt 5.7. abgeleiteten Beziehungen erhält man folgende Differentialgleichungen:

$$\frac{dN_1}{dt} = -\lambda_1 N_1$$

$$\frac{dN_2}{dt} = \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2$$

$$\frac{dN_3}{dt} = \lambda_2 N_2 - \lambda_3 N_3 \tag{5.59}$$

$$\frac{dN_n}{dt} = \lambda_{n-1} N_{n-1} - \lambda_n N_n.$$

Löst man diese Differentialgleichungen für die Anfangsbedingungen, daß zur Zeit $t = 0$

$$N_1 = N_1^0 \text{ und } N_2^0 = N_3^0 = \ldots = N_n^0 = 0 \tag{5.60}$$

ist, so erhält man für die Zahl $N_n(t)$ der Atome des n-ten Gliedes der Kette zur Zeit t:

$$N_n(t) = c_1 e^{-\lambda_1 t} + c_2 e^{-\lambda_2 t} + c_3 e^{-\lambda_3 t} + \ldots + c_n e^{-\lambda_n t}. \tag{5.61}$$

Die konstanten Koeffizienten in dieser Gleichung sind:

$$c_1 = \frac{\lambda_1 \lambda_2 \ldots\ldots \lambda_{n-1}}{(\lambda_2 - \lambda_1)(\lambda_3 - \lambda_1) \ldots\ldots (\lambda_n - \lambda_1)} N_1^0$$

$$c_2 = \frac{\lambda_1 \lambda_2 \ldots\ldots \lambda_{n-1}}{(\lambda_1 - \lambda_2)(\lambda_3 - \lambda_2) \ldots\ldots (\lambda_n - \lambda_2)} N_1^0 \tag{5.62}$$

$$c_n = \frac{\lambda_1 \lambda_2 \ldots\ldots \lambda_{n-1}}{(\lambda_1 - \lambda_n)(\lambda_2 - \lambda_n) \ldots\ldots (\lambda_{n-1} - \lambda_n)} N_1^0.$$

Mit Hilfe dieser Beziehungen kann man eine beliebige Kette von Radionukliden behandeln, die durch mehrere aufeinanderfolgende Umwandlungen entstehen.

Für das Tochternuklid (2) erhält man aus den Gln. (5.61) und (5.62) mit dem Wert $n=2$ die bereits bekannte Gl. (5.31).

Für manche praktische Aufgaben sind auch die Beziehungen nützlich, die für die „Enkeltochter" ($n=3$) resultieren:

$$N_3 = \lambda_1 \lambda_2 N_1^0 \left[\frac{e^{-\lambda_1 t}}{(\lambda_2 - \lambda_1)(\lambda_3 - \lambda_1)} + \frac{e^{-\lambda_2 t}}{(\lambda_1 - \lambda_2)(\lambda_3 - \lambda_2)} + \frac{e^{-\lambda_3 t}}{(\lambda_2 - \lambda_3)(\lambda_1 - \lambda_3)}\right]. \tag{5.63}$$

Ist die „Enkeltochter" stabil ($\lambda_3=0$), so folgt für das Anwachsen von N_3 die Gleichung

$$N_3 = N_1^0 \left[1 - \frac{\lambda_2}{\lambda_2 - \lambda_1} e^{-\lambda_1 t} - \frac{\lambda_1}{\lambda_1 - \lambda_2} e^{-\lambda_2 t}\right] \tag{5.64}$$

bzw.

$$N_3 = N_1^0 \left[1 - e^{-\lambda_1 t} - \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1}(e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t})\right] \tag{5.65}$$

und daraus unter Berücksichtigung der Gln. (5.28) und (5.31)

$$N_3 = N_1^0 - N_1 - N_2. \tag{5.66}$$

Gl. (5.66) besagt nichts anderes, als daß die Zahl der Atome des stabilen Endprodukts gleich ist der Zahl der ursprünglich vorhandenen Atome des radioaktiven Mutternuklids N_1^0, abzüglich der noch vorhandenen Zahl N_1 und der Zahl der Atome des Zwischenprodukts N_2.

Ist die Halbwertzeit des Mutternuklids sehr viel größer als die Halbwertzeiten der genetisch folgenden Radionuklide (säkulares Gleichgewicht), so vereinfacht sich die für das n-te Folgeprodukt gültige Beziehung (5.62) sehr stark, wenn radioaktives Gleichgewicht vorliegt. Weil in diesem Falle $\lambda_1 \ll \lambda_2, \lambda_3 \ldots \lambda_n$ ist, werden im radioaktiven Gleichgewicht (d. h. nach verhältnismäßig langer Zeit t) alle Terme gegenüber dem ersten vernachlässigbar klein. Dann ist

$$N_n = c_1 e^{-\lambda_1 t}. \tag{5.67}$$

Außerdem folgt aus Gl. (5.62)

$$c_1 = \frac{\lambda_1}{\lambda_n} N_1^0 \tag{5.68}$$

und damit

$$\frac{N_n}{N_1} = \frac{\lambda_1}{\lambda_n} \text{ bzw. } \frac{N_n}{N_1} = \frac{t_{1/2}(n)}{t_{1/2}(1)}. \tag{5.69}$$

Ferner gilt

$$A_n = A_1. \tag{5.70}$$

Die gleichen Beziehungen wurden bereits im Abschnitt 5.8. für das säkulare Gleichgewicht zwischen einem Mutternuklid (1) und einem Tochternuklid (2) hergeleitet, siehe Gln. (5.40) und (5.41); d. h. im säkularen Gleichgewicht gelten die in Abschnitt 5.8. abgeleiteten Gesetzmäßigkeiten nicht nur für das unmittelbar folgende Tochternuklid, sondern ebenso für alle weiteren radioaktiven Folgeprodukte. Von dieser Tatsache haben wir bereits bei den Anwendungen der für das säkulare Gleichgewicht gültigen Gesetzmäßigkeiten in Abschnitt 5.8. Gebrauch gemacht.

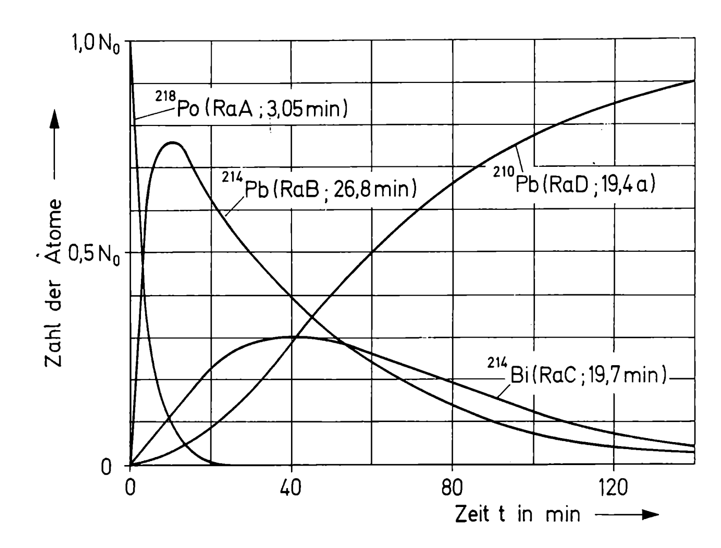


Abb. (5–13) Mehrere aufeinanderfolgende Umwandlungen — Zerfall des ^{218}Po. Nach E. Rutherford, J. Chadwick u. C. D. Ellis: Radiations from Radioactive Substances. Cambridge University Press, London 1930.

Als Beispiel für mehrere aufeinanderfolgende Umwandlungen sei der Zerfall von Po–218 (RaA) gewählt (Abb. (5–13)). Aus dem Po–218 entsteht durch α-Zerfall verhältnismäßig rasch Pb–214 (RaB), dessen Menge nach etwa 10 Minuten ein steiles Maximum durchläuft. Durch β^--Zerfall des Pb–214 (RaB) entsteht Bi–214 (RaC); die Menge des Bi–214 erreicht nach etwa 40 Minuten ein flaches Maximum. Nach 2 Stunden sind nur noch geringe Mengen an Pb–214 und Bi–214 vorhanden. Der Großteil dieser Nuklide hat sich in das langlebige Pb–210 (RaD) umgewandelt, das mit einer Halbwertzeit von 21 a zerfällt.

5.13. Verzweigung (Dualer Zerfall)

Der Fall, daß ein Radionuklid mehrere Zerfallsmöglichkeiten hat, kommt verhältnismäßig häufig vor, und zwar bevorzugt bei solchen u,u-Kernen, die sich auf der Linie der β-Stabilität befinden (z. B. K–40, Cu–64 — vgl. Abschn. 1.5. und Abb. (1–9)). So zeigt das in der Natur vorkommende K–40 zwei verschiedene Zerfallsarten, die in Abb. (5–14) aufgezeichnet sind. Zu 89% geht es unter Aussendung von β^--Strahlung in Ca–40 über, zu 11% unter Aussendung von β^+-Strahlung in Ar–40.

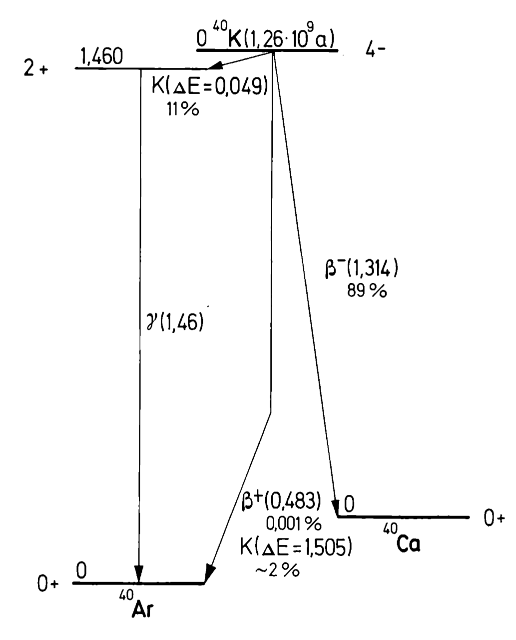


Abb. (5–14) Dualer Zerfall — Beispiel ^{40}K (Energien in MeV).

Verzweigungen — d. h. verschiedene Zerfallsmöglichkeiten eines Radionuklids — werden auch in den Zerfallsreihen des Urans und des Thoriums mehrfach beobachtet (Tab. 5.1., 5.3. und 5.4.). Im allgemeinen ist dabei die eine Umwandlung sehr stark vor der anderen bevorzugt. Lediglich im Falle des Bi–212 (ThC) sind die Wahrscheinlichkeiten für den β^--Zerfall (64,0%) und für den α-Zerfall (36,0%) vergleichbar (vgl. Abb. (5–15)). Stets aber zerfallen die aus der Verzweigung hervorgegangenen Tochternuklide in der Weise, daß das gleiche Nuklid entsteht (vgl. Abb. (5–15)); d. h., die Verzweigung schließt sich wieder.

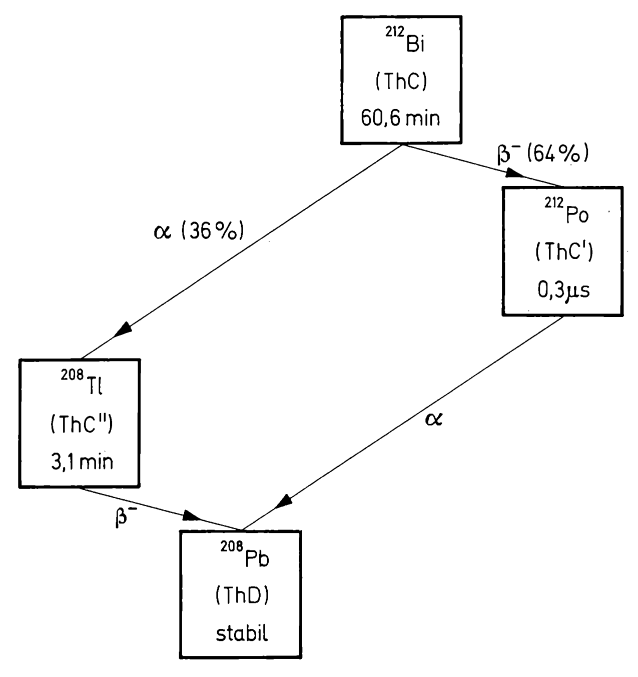


Abb. (5–15) Verzweigung — Beispiel ^{212}Bi.

Eine Verzweigung (dualer Zerfall) kann durch folgendes Schema beschrieben werden:

$$\begin{array}{ccc} & A & \\ \lambda_b \swarrow & & \searrow \lambda_c \\ B & & C \end{array} \qquad (5.71)$$

λ_b ist die Wahrscheinlichkeit, daß sich das Nuklid A in das Nuklid B umwandelt, λ_c die Wahrscheinlichkeit, daß es sich in das Nuklid C um-

wandelt. Da die beiden Zerfallsmöglichkeiten voneinander unabhängig sind, addieren sich die beiden Zerfallswahrscheinlichkeiten, und die Zerfallsrate des Nuklids A ist gleich der Summe der beiden Umwandlungsraten:

$$-\frac{dN_A}{dt} = \lambda_b N_A + \lambda_c N_A = (\lambda_b + \lambda_c) N_A = \lambda_A N_A. \quad (5.72)$$

Durch Integration folgt daraus

$$N_A = N_A^0 \, e^{-(\lambda_b + \lambda_c)t}. \quad (5.73)$$

Im Falle einer Verzweigung kann man also die verschiedenen Zerfallswahrscheinlichkeiten unterscheiden. Im Gegensatz dazu gibt es aber nur eine Halbwertzeit:

$$t_{1/2}(A) = \frac{\ln 2}{\lambda_A} = \frac{\ln 2}{\lambda_b + \lambda_c}. \quad (5.74)$$

Für die Bildungsrate der Nuklide B und C gilt:

$$\frac{dN_B}{dt} = \lambda_b N_A \text{ bzw. } \frac{dN_C}{dt} = \lambda_c N_A, \quad (5.75)$$

für ihre Zerfallsrate

$$-\frac{dN_B}{dt} = \lambda_B N_B \text{ bzw. } -\frac{dN_C}{dt} = \lambda_C N_C. \quad (5.76)$$

Die Nettobildungsrate des Nuklids B beträgt

$$\frac{dN_B}{dt} = \lambda_b N_A - \lambda_B N_B. \quad (5.77)$$

Mit Gl. (5.73) folgt

$$\frac{dN_B}{dt} + \lambda_B N_B - \lambda_b N_A^0 e^{-(\lambda_b + \lambda_c)t} = 0. \quad (5.78)$$

Die Integration dieser Gleichung liefert mit der Anfangsbedingung $N_B = 0$ zur Zeit $t = 0$

$$N_B = \frac{\lambda_b}{\lambda_B - (\lambda_b + \lambda_c)} N_A^o (e^{-(\lambda_b + \lambda_c)t} - e^{-\lambda_B t}). \tag{5.79}$$

Diese Gleichung entspricht der für den einfachen Zerfall gültigen Gleichung (5.31). Für das Nuklid C erhält man eine ähnliche Gleichung. Ist das Mutternuklid sehr langlebig ($\lambda_b + \lambda_c \ll \lambda_B$), so folgt

$$N_B = \frac{\lambda_b}{\lambda_B} N_A (1 - e^{-\lambda_B t}). \tag{5.80}$$

Dann gilt im radioaktiven Gleichgewicht

$$\frac{N_B}{N_A} = \frac{\lambda_b}{\lambda_B} \text{ bzw. } \frac{N_C}{N_A} = \frac{\lambda_c}{\lambda_C}. \tag{5.81}$$

Unter diesen Bedingungen kann man formal partielle Halbwertzeiten definieren:

$$t_{1/2}(A)_b = \frac{\ln 2}{\lambda_b} \text{ bzw. } t_{1/2}(A)_c = \frac{\ln 2}{\lambda_c} \tag{5.82}$$

und erhält damit die der Gleichung (5.40) analogen Beziehungen

$$\frac{N_B}{N_A} = \frac{t_{1/2}(B)}{t_{1/2}(A)_b} \text{ bzw. } \frac{N_C}{N_A} = \frac{t_{1/2}(C)}{t_{1/2}(A)_c}. \tag{5.83}$$

Sind dagegen die Tochternuklide sehr viel langlebiger oder entstehen stabile Tochternuklide (wie beim Zerfall von K–40), so folgt

$$N_B = \frac{\lambda_b}{\lambda_b + \lambda_c} N_A^o (1 - e^{-(\lambda_b + \lambda_c)t}) \tag{5.84}$$

und daraus mit Gl. (5.73)

$$\left.\begin{aligned} N_B &= \frac{\lambda_b}{\lambda_b + \lambda_c} N_A (e^{(\lambda_b + \lambda_c)t} - 1) \\ &\text{bzw.} \\ N_C &= \frac{\lambda_c}{\lambda_b + \lambda_c} N_A (e^{(\lambda_b + \lambda_c)t} - 1). \end{aligned}\right\} \tag{5.85}$$

Für das Verhältnis der Zahl der Atome gilt

$$\frac{N_B}{N_C} = \frac{\lambda_b}{\lambda_c}. \tag{5.86}$$

Wenn die Zeit t sehr klein gegenüber der Halbwertzeit des Radionuklids A ist ($t \ll t_{1/2}(A)$), so folgt aus Gl. (5.85):

$$\frac{N_B}{N_A} = \lambda_b t \text{ bzw. } \frac{N_C}{N_A} = \lambda_c t. \tag{5.87}$$

Literatur zu Kapitel 5

1. R. D. Evans: The Atomic Nucleus. McGraw-Hill Book Comp., New York 1955, Kap. 15.
2. R. T. Overman, H. M. Clark: Radioisotope Techniques. McGraw-Hill Book Comp., New York 1960.
3. E. Segrè (Hrsg.): Radioactive Decay. In: Experimental Nuclear Physics, Bd. III, Tl. VIII. John Wiley and Sons, New York 1959, S. 1.
4. Landolt-Börnstein: Zahlenwerte und Funktionen aus Naturwissenschaften und Technik. Neue Serie. Bd. 1: Energie-Niveaus der Kerne A = 5 bis A = 257. Hrsg. K. H. Hellwege. Springer-Verlag, Berlin-Heidelberg 1961.
5. Table of Isotopes, Hrsg. C. M. Lederer, J. M. Hollander u. I. Perlman, John Wiley and Sons, New York, 6. Auflage 1967.
6. H. Bateman: The Solution of a System of Differential Equations Occuring in the Theory of Radio-active Transformations. Proc. Cambridge philos. Soc. **15** (1910) 423.
7. Handbuch der Physik. Hrsg. S. Flügge. Bd. 41, Tl. 2: Betazerfall. Springer-Verlag, Berlin-Göttingen-Heidelberg 1962.

Übungen zu Kapitel 5

1. Aus der Differenz der Nuklidmassen berechne man die Energien für folgende Zerfallsprozesse

$$^{8}\text{Be} \longrightarrow 2\,\alpha$$

$$^{238}\text{U} \xrightarrow{\alpha} {}^{234}\text{Th}$$

2. Aus der Halbwertzeit des U–238 berechne man die Zahl der Atome U–238, die in 1 mg des natürlichen Urans pro Minute zerfallen.

3. Wie groß ist die Menge von 1 Ci der folgenden Radionuklide: H–3, C–14, Na–24, S–35, J–131?

4. Wie groß ist die spezifische Aktivität (Ci/g) von U–238, Th–234, Pa–234 m und U–234?

5. Für das jeweils langlebigste Nuklid der Elemente Polonium, Astat, Francium, Technetium und Uran berechne man die Aktivität von je 1 mg in Curie.

6. Welche Impulsrate (ipm) liefert a) 1 μCi Na–24 bei einer Zählausbeute von 5%, b) 1 nCi C–14 bei einer Zählausbeute von 30%?

7. Bei der Messung zweier unabhängig voneinander zerfallender Nuklide wurden folgende Impulsraten gefunden

Zeit (h)	Impulsrate	Zeit (h)	Impulsrate
0	20000	5	2210
0,5	13100	6	1640
1	9360	7	1210
1,5	7190	8	900
2	5820	10	495
3	4120	12	270
4	3000		

Beide Nuklide sind β^--Strahler und lassen sich mit Silbernitrat ausfällen. Welche Halbwertzeit besitzen die Nuklide? Wie groß ist das Verhältnis ihrer Impulsraten zu Beginn der Messung? Um welche Nuklide handelt es sich?

8. Wie groß ist die Halbwertzeit des Th–232, wenn 1 kg Th–232 $4{,}74 \cdot 10^{-4}$ mg Ra–228 enthält? (Halbwertzeit des Ra–228 = 6,7 a)

9. Wieviel Ac–227 befindet sich in 1 kg Pechblende (U_3O_8)?

10. Die Aktivität des im radioaktiven Gleichgewicht gebildeten Rn–222 beträgt 10 nCi; wie groß ist die Menge des vorhandenen Ra–226?

11. Wie groß ist das Mengenverhältnis und das Aktivitätsverhältnis von Ba–140 und La–140 im radioaktiven Gleichgewicht?

12. Nb–95 wird chemisch von Zr–95 abgetrennt. Wie verläuft die Aktivität der ^{95}Zr-Fraktion als Funktion der Zeit (aufzeichnen)? Zu welchem Zeitpunkt nach der Trennung kann in der ^{95}Zr-Fraktion die Halbwertzeit des Zr–95 mit einem Fehler von 2% bestimmt werden? Wann wird in dieser Fraktion die maximale Aktivität des Nb–95 erreicht?

13. Welche Zeit ist zur Einstellung der folgenden radioaktiven Gleichgewichte erforderlich, wenn ein Fehler von 1% zugelassen wird?

$$\text{a) } {}^{238}\text{U} \xrightarrow[4{,}51 \cdot 10^9\,\text{a}]{\alpha} {}^{234}\text{Th} \xrightarrow[24{,}1\,\text{d}]{\beta^-} {}^{234\text{m}}\text{Pa}$$

$$\text{b) } {}^{83}\text{Br} \xrightarrow[2{,}41\,\text{h}]{\beta^-} {}^{83\text{m}}\text{Kr} \xrightarrow[1{,}86\,\text{h}]{\text{I.U.}} {}^{83}\text{Kr}$$

14. Gegeben ist frisch abgetrenntes Pb–210 (RaD). Man zeichne die Aktivität der daraus gebildeten Radionuklide Bi–210 (RaE) und Po–210 (RaF) als Funktion der Zeit auf.

15. Bi–212 (ThC) zerfällt unter Aussendung von α-Strahlung (36,0%) und β^--Strahlung (64,0%); die Halbwertzeit beträgt 60,6 min. Wie groß sind die partiellen Zerfallskonstanten für den α-Zerfall und den β^--Zerfall? Wieviele α- und β^--Teilchen pro Minute entstehen in einem Präparat, das frisch hergestellt wurde und 10^{-7} Ci Bi–212 enthält? Wieviele α- und β^--Teilchen pro Minute entstehen in dem gleichen Präparat nach 3 Stunden?

16. Man berechne die Menge an Fr–223 im radioaktiven Gleichgewicht mit Ac–227 (Ac–227 geht zu 1,4% in Fr–223 über) und das Aktivitätsverhältnis Fr–223 : Ra–223.

6. Radioaktive Strahlung

6.1. Eigenschaften der verschiedenen Strahlungsarten

Kenntnisse über die Eigenschaften der radioaktiven Strahlung sind wichtig im Hinblick auf die Messung und Identifizierung von Radionukliden sowie für den Strahlenschutz. Dabei stehen folgende Gesichtspunkte im Vordergrund: die Wechselwirkung der Strahlung mit Materie — d. h. ihre Absorption — und die Methoden der Energiebestimmung. Genaue Energiebestimmungen sind notwendig zur Aufstellung von Energiediagrammen (Zerfallschemata) für die verschiedenen Zerfallsprozesse, die in Kapitel 7 näher behandelt werden. β-Strahlung besitzt im Gegensatz zur α-Strahlung und zur γ-Strahlung eine kontinuierliche Energieverteilung; d. h. die Energie der Elektronen oder Positronen der β^-- bzw. β^+-Strahlung bewegt sich zwischen Null und einer Maximalenergie E_{max}, die durch die Zerfallsenergie gegeben ist. Die Ursache dieser kontinuierlichen Energieverteilung wird in den Abschnitten 7.3.1. und 7.3.2. besprochen.

Alle geladenen Teilchen höherer Energie (α-Strahlen, Protonen, Elektronen, Positronen) lösen in gasförmigen, flüssigen und festen Stoffen Ionisationsvorgänge aus, wobei sie einen Teil ihrer Energie verlieren. So werden beim Auftreffen der Strahlung auf Gasmoleküle M Ionen und Elektronen erzeugt:

$$\mathrm{M} \rightsquigarrow \mathrm{M}^+ + \mathrm{e}^- \qquad (6.1)$$

Der Pfeil $\rightsquigarrow$ deutet an, daß es sich um eine Reaktion unter der Einwirkung von ionisierender Strahlung handelt. Außerdem können auch angeregte Moleküle M* entstehen:

$$\mathrm{M} \rightsquigarrow \mathrm{M}^*. \qquad (6.2)$$

Diese Reaktionen und die dadurch ausgelösten Folgereaktionen werden in der Strahlenchemie näher untersucht. Wenn die geladenen Teil-

chen — insbesondere α-Strahlen und Protonen — hinreichend hohe Energie besitzen, können sie auch Kernreaktionen auslösen. Elektronen werden abgebremst, wenn sie in das Kraftfeld der Atomkerne kommen, und geben dabei einen Teil ihrer Energie in Form von Photonen ab (Bremsstrahlung). Wenn die Elektronen Energien von der Größenordnung 1 MeV besitzen (z. B. β-Strahlung), wird eine harte Röntgenstrahlung (Röntgenbremsstrahlung) ausgesandt; beim Abbremsen von hochenergetischen Elektronen (> 10 MeV) entstehen Photonen, deren Energie etwa der Energie von γ-Quanten entspricht.

Ungeladene Teilchen (Neutronen) können entweder durch Zusammenstöße einen Teil ihrer Energie an andere Teilchen übertragen oder Kernreaktionen auslösen. Photonen geben im Gegensatz zu Partikeln ihre Energie meist auf einmal an ein Elektron ab; dabei entstehen sogenannte Photoelektronen.

Das Verhalten der verschiedenen Strahlungsarten in einem Magnetfeld ist in Abb. (6–1) angegeben. γ-Strahlung erfährt keine Ablenkung.

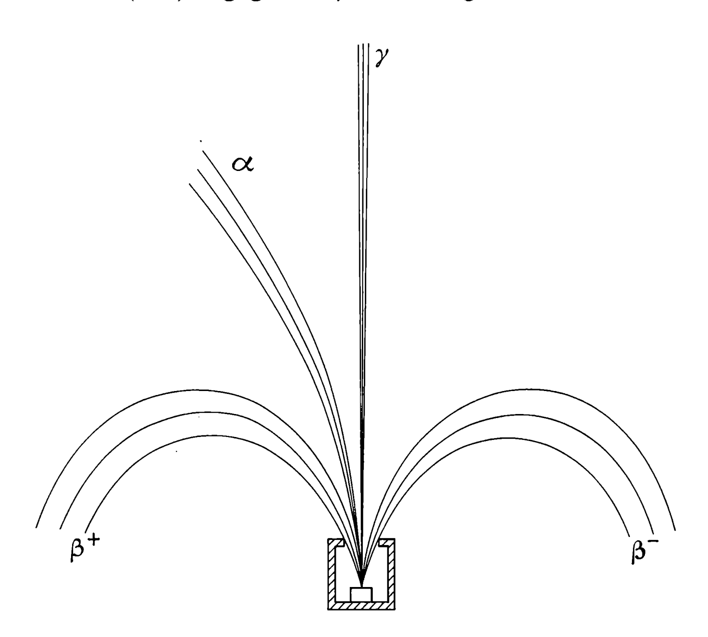


Abb. (6–1) Verhalten der verschiedenen Strahlungsarten in einem Magnetfeld.

β^--Strahlen werden in entgegengesetzter Richtung abgelenkt wie β^+-Strahlen und α-Strahlen. Die α-Strahlen werden wegen ihrer größeren Masse sehr viel weniger beeinflußt als die Elektronen; die Ablenkung ist abhängig von dem Quotienten $\frac{e}{m}$ (e = Ladung, m = Masse).

α-Strahlung kann sehr leicht absorbiert werden (z. B. durch ein Blatt Papier). β-Strahlung ist durchdringender; sie kann im allgemeinen erst durch Aluminiumbleche von mehreren Millimetern Dicke quantitativ absorbiert werden. γ-Strahlung besitzt wegen ihrer geringen Wechselwirkung mit Materie das größte Durchdringungsvermögen; zu ihrer Absorption sind Bleiwände oder dicke Wände aus Beton erforderlich. Bei gleicher Energie verhalten sich die Absorptionskoeffizienten für α-, β- und γ-Strahlung etwa wie $10^4 : 10^2 : 1$. Dabei ist wichtig, daß α- und β-Strahlen quantitativ absorbiert werden können, weil es sich um Teilchen handelt, γ-Quanten jedoch immer nur zu einem gewissen Bruchteil, weil ihre Absorption einem echten Exponentialgesetz folgt.

6.2. α-Strahlung

6.2.1. Absorption

Wie bereits erwähnt, können α-Strahlen sehr leicht absorbiert werden; d. h. ihre Wechselwirkung mit Materie ist sehr stark. Ein Stück Papier, eine Aluminiumfolie mit einer Stärke von etwa 0,04 mm oder einige Zentimeter Luft genügen, um eine quantitative Absorption zu erreichen. Die geringe Reichweite der α-Strahlung in Gasen kann man auch in der Nebelkammer erkennen (Abb. (6–2)): Die Bahn der α-Teilchen ist kurz; sie wird nur wenig beeinflußt durch die Zusammenstöße mit den Elektronen der Atomhülle. Nur in sehr seltenen Fällen findet ein Zusammenstoß mit einem Atomkern statt. Dann erfährt das α-Teilchen eine starke Ablenkung, oder es wird vom Atomkern eingefangen (Kernreaktion).

Ihre Energie verlieren die α-Teilchen durch Ionisationsvorgänge längs ihres Weges. Ein Maß für die Wechselwirkung ist die spezifische Ionisation; dies ist die Zahl der pro Millimeter Weg gebildeten Ionenpaare. Sie ist abhängig von der Geschwindigkeit der α-Teilchen und beträgt in Luft am Anfang etwa 3000, am Ende etwa 7000. Der Verlauf der spezifischen Ionisation als Funktion des Weges ist für die α-Strahlung des ^{210}Po (RaF) in Abb. (6–3) aufgezeichnet. Die spezifische Ionisation steigt in dem gleichen Maße an, in dem das α-Teilchen an Geschwindigkeit verliert. Bei jedem Ionisationsvorgang wird ein Elektron und ein Ion erzeugt (Ionenpaar); im Mittel werden dafür in Luft etwa 35 eV verbraucht (für andere Gase gelten ähnliche Werte).

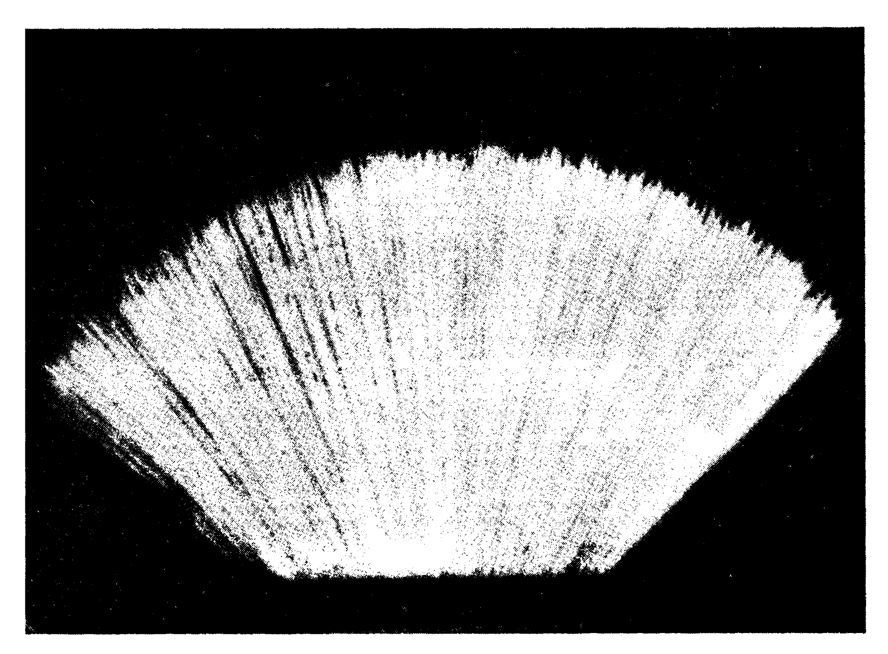


Abb. (6–2) α-Strahlen in einer Nebelkammer. Aus K. PHILIPP: Naturwissenschaften **14** (1926) 1203.

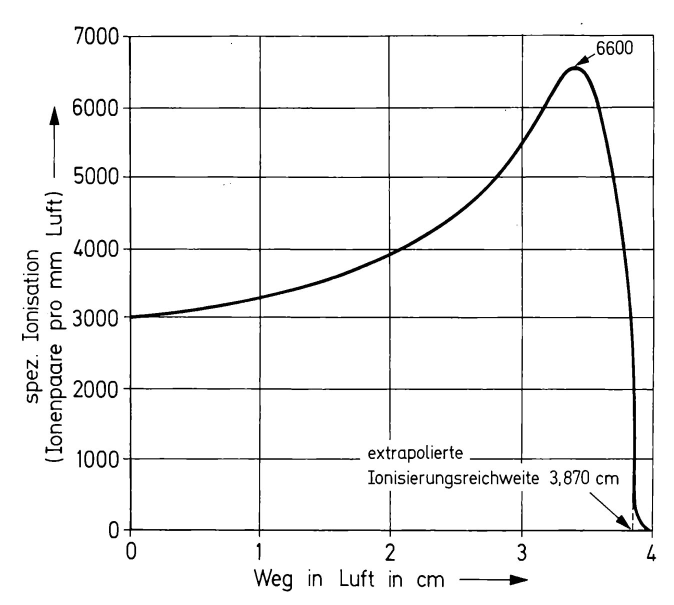


Abb. (6–3) Spezifische Ionisation von α-Strahlen (Po–210) in Luft als Funktion des Weges. Nach E. RUTHERFORD, J. CHADWICK u. C. D. ELLIS: Radiations from Radioactive Substances. Cambridge University Press, London 1930; G. STETTER u. W. JENTSCHKE: Physik. Z. **36** (1935) 441.

Ein α-Teilchen mit einer Anfangsenergie von 3,5 MeV erzeugt somit insgesamt längs seines Weges etwa 10^5 Ionenpaare. Schließlich entsteht aus dem α-Teilchen ein neutrales Heliumatom.

In Abb. (6–4) ist die Zahl der α-Teilchen als Funktion des Weges aufgezeichnet, ebenfalls für ^{210}Po (RaF). Alle α-Teilchen legen etwa den gleichen Weg zurück; d. h. sie besitzen ungefähr die gleiche Reich-

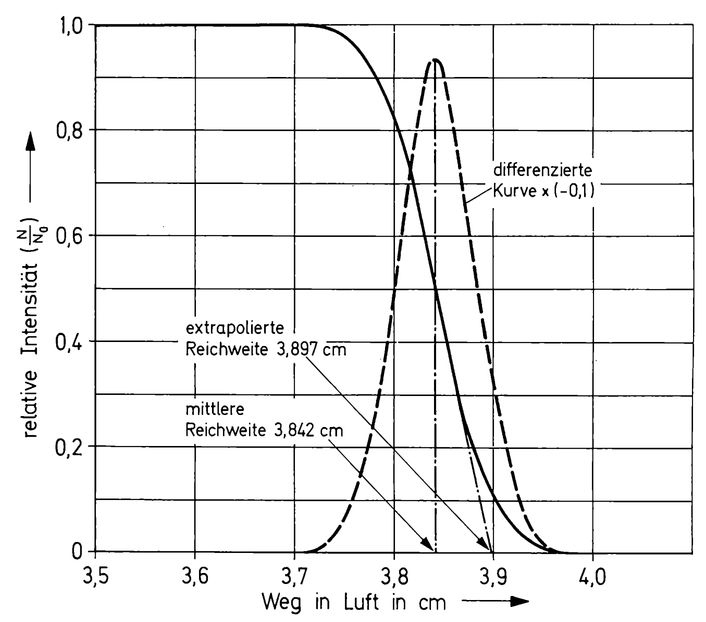


Abb. (6–4) Zahl der α-Teilchen als Funktion des Weges (Po–210). Nach M. G. HOLLOWAY u. M. ST. LIVINGSTON: Physic. Rev. **54** (1938) 18.

weite (vgl. die Nebelkammeraufnahme, Abb. (6–2)). Da die Zahl der Zusammenstöße gewissen statistischen Schwankungen unterworfen ist, wird eine kleine Streuung hinsichtlich der Reichweite beobachtet. Um die Reichweite genau festzulegen, bedient man sich verschiedener Methoden:

a) Die „extrapolierte Reichweite" erhält man durch Extrapolation des geradlinigen Teils der Kurve für die Teilchenzahl (Abb. (6–4)).
b) Die „mittlere Reichweite" entspricht dem Maximum der 1. Ableitung der Kurve für die Teilchenzahl (Abb. (6–4)).
c) Die „extrapolierte Ionisierungsreichweite" erhält man durch Extrapolation des geradlinigen Teils der Kurve für die spezifische Ionisation (Abb. (6–3)).

Die auf diese Weise festgelegten verschiedenen Reichweiten sind für einige α-Strahler in Tab. 6.1. angegeben.

Die praktische Bestimmung der Reichweite von α-Strahlen in Luft ist mit Hilfe einer einfachen Vorrichtung (Abb. (6–5)) möglich: Der α-Strahler wird mit einer Mikrometerschraube langsam von einem

Tabelle 6.1.
Reichweite von α-Strahlen

α-Strahler	Energie in MeV	Mittlere Reichweite in Luft in cm	Extrapolierte Reichweite in cm	Mittlere Ionisations-reichweite in cm
^{211}Bi (AcC)	6,273	4,984	5,053	5,015
	6,620	5,429	5,503	5,462
^{212}Bi (ThC)	6,047	4,730	4,796	4,778
^{210}Po (RaF)	5,301	3,842	3,897	3,870
^{212}Po (ThC′)	8,780	8,570	8,676	8,616
	9,492	9,724	9,841	9,780
	10,543	11,580	11,713	11,643
^{214}Po (RaC′)	7,680	6,907	6,997	6,953
	8,277	7,793	7,891	7,839
	9,065	9,04	9,15	9,09
	10,506	11,51	11,64	11,57
^{216}Po (ThA)	6,775	5,638	5,714	5,672
^{218}Po (RaA)	5,998	4,657	4,722	4,685
^{219}Rn (An)	6,542	5,240	5,312	5,272
	6,807	5,692	5,769	5,727

Werte aus:
M. G. Holloway, M. S. Livingston: Physic. Rev. **54** (1938) 36.
G. H. Briggs: Rev. mod. Physics **26** (1954) 4.

Zinksulfidschirm fortbewegt. Solange die α-Teilchen auf den Zinksulfidschirm auftreffen, bleibt die Zahl der Szintillationen konstant. Wenn der Abstand des Präparats vom Zinksulfidschirm der Reichweite entspricht, fällt die Zahl der Szintillationen sehr rasch auf Null ab. Auf diese Weise kann eine Kurve nach Abb. (6–4) aufgenommen werden.

Die Reichweite von α-Strahlen in verschiedenen Stoffen ist aus Tab. 6.2. ersichtlich. Multipliziert man die Reichweite (in 10^{-3} cm) mit der Dichte der Stoffe, so erhält man die Reichweite in mg/cm² (Flächen-

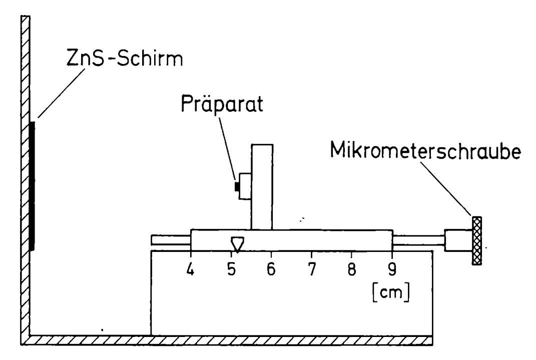


Abb. (6–5) Vorrichtung zur Bestimmung der Reichweite von α-Strahlen in Luft.

gewicht). Man erkennt, daß die Reichweite in erster Linie vom Flächengewicht der als Absorber benutzten Stoffe abhängig ist. Mit zunehmender Ordnungszahl der Stoffe treten jedoch ziemlich starke Abweichungen auf.

Zur Charakterisierung der Absorptionseigenschaften eines Stoffes für geladene Teilchen benutzt man häufig das sogenannte Bremsver-

Tabelle 6.2.
Reichweite von α-Strahlen (^{214}Po, $E = 7{,}69$ MeV) in verschiedenen Stoffen

Stoff	Extrapolierte Reichweite in cm	Dichte in g/cm³	Reichweite in mg/cm²
Luft	6,95	0,001226	8,5
Glimmer	0,0036	2,8	10,1
Lithium	0,01291	0,534	6,9
Aluminium	0,00406	2,702	11,0
Zink	0,00228	7,14	16,3
Eisen	0,00187	7,86	14,7
Kupfer	0,00183	8,92	16,3
Silber	0,00192	10,50	20,2
Gold	0,00140	19,32	27,0
Blei	0,00241	11,34	27,3

Werte für die extrapolierte Reichweite aus:

E. Rutherford, J. Chadwick, C. D. Ellis: Radiations from Radioactive Substances. Cambridge University Press, London 1951.

mögen B („stopping power"); dies wird definiert durch den Energieverlust des Teilchens pro Einheit des Weges

$$B(E) = -\frac{\mathrm{d}E}{\mathrm{d}x}. \tag{6.3}$$

Das Bremsvermögen ist abhängig von der Energie des Teilchens, ähnlich wie die spezifische Ionisation. Die Reichweite R ist gegeben durch

$$R = \int_0^{E_0} \frac{\mathrm{d}E}{B(E)}, \tag{6.4}$$

wenn E_0 die Anfangsenergie des α-Teilchens ist. Das Bremsvermögen $B(E)$ kann nach Gleichung (6.3) berechnet werden, wenn die Reichweite als Funktion der Energie bekannt ist; es kann aber auch experimentell bestimmt werden aus dem Energieverlust von α-Teilchen verschiedener Energie beim Durchtritt durch Stoffe bestimmter Dicke.

6.2.2. Energiebestimmung

Zwischen der Reichweite der α-Teilchen in Luft und ihrer Energie besteht eine eindeutige Beziehung, so daß man auf Grund der experimentell bestimmten Reichweite eine Energiebestimmung durchführen kann. Die Abhängigkeit zwischen der mittleren Reichweite in Luft (unter Normalbedingungen) und der Energie der α-Teilchen ist in Abb. (6–6) aufgezeichnet. Für Reichweiten von etwa 3 bis 7 cm gilt angenähert die Beziehung R (cm) $= 0{,}318\ E^{3/2}$ (E in MeV).

Heute benutzt man zur Energiebestimmung oder zur Identifizierung von α-Strahlen häufig ein Alpha-Spektrometer, das mit einem Kristall als Detektor ausgerüstet ist; der Impuls ist proportional der Energie der α-Teilchen (Abb. (6–7)). Die Eichung erfolgt mit α-Strahlen bekannter Energie.

Die genauesten Energiebestimmungen von α-Teilchen (und ebenso von Protonen und Deuteronen) sind mit Hilfe eines magnetischen Spektrographen möglich. Geladene Teilchen beschreiben im magnetischen Feld eine Kreisbahn. Zwischen der Induktionsflußdichte B, der Geschwindigkeit v der α-Teilchen und dem Bahnradius r besteht

die Beziehung

$$v = Br\frac{Ze}{m}. \tag{6.5}$$

Ze ist die Ladung und *m* die Masse der Teilchen. Setzt man *B* und *Ze* in elektromagnetischen Einheiten ein (1 Gauß $= 10^{-8}$ Vs cm^{-2}

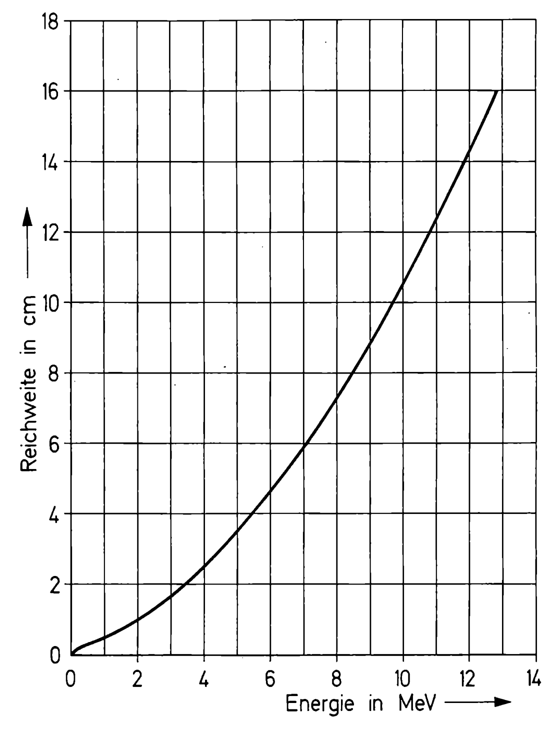


Abb. (6–6) Reichweite von α-Strahlen in Luft bei 15 °C und 760 mm als Funktion der Energie. Nach W. P. Jesse u. J. Sadanskis: Physic. Rev. **78** (1950) 1.

bzw. 1 elektromagnetische Ladungseinheit = 10 As) und *r* in cm, so erhält man die Geschwindigkeit in cm s^{-1}. Für die Energie der α-Strahlen folgt daraus

$$E = \frac{m}{2}v^2 = \frac{2e^2}{m}B^2r^2. \tag{6.6}$$

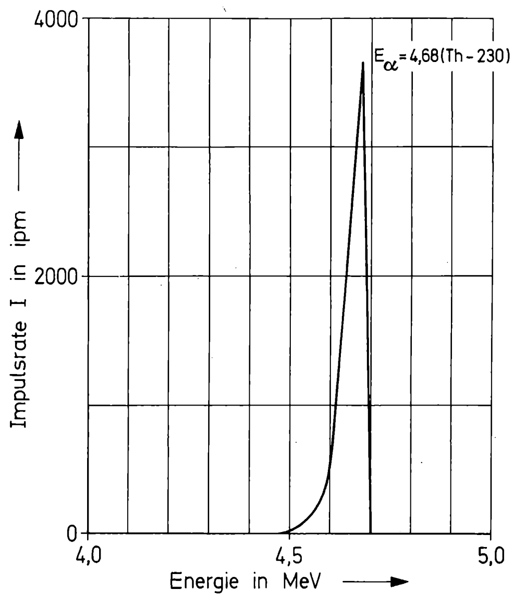


Abb. (6–7) Spektrum eines α-Strahlers (Th–230).

Für genaue Bestimmungen oder bei hohen Energien ist eine relativistische Korrektur erforderlich; dann tritt an Stelle von Gl. (6.5.) die Gleichung

$$v = Br \frac{Ze}{m_0} \sqrt{1 - \left(\frac{v}{c}\right)^2}. \tag{6.7}$$

In entsprechender Weise ändert sich dann auch Gl. (6.6). Die Genauigkeit der Energiebestimmung nach dieser Methode beträgt ≈ 1%.

6.3. β-Strahlung

6.3.1. Absorption

β-Strahlung wird durch Luft kaum absorbiert; ihre Wechselwirkung mit Materie ist wesentlich geringer als die der α-Strahlung. Während ein α-Teilchen mit einer Energie von 3 MeV in Luft eine Reichweite von etwa 1,7 cm besitzt und einige Tausend Ionenpaare pro Millimeter Weg erzeugt, legt ein β-Teilchen der gleichen Energie in Luft einen Weg von etwa 10 m zurück und erzeugt dabei nur etwa 4 Ionenpaare pro Millimeter Weg. Andererseits werden die Elektronen bei der Wechselwirkung mit anderen Elektronen sehr viel stärker abgelenkt

als die schwereren α-Teilchen; sie bewegen sich deshalb auf einer Zickzackbahn. Die geringe spezifische Ionisation und die Ablenkung bei Zusammenstößen kann man auch aus der Spur in einer Nebelkammer erkennen (Abb. (6–8)).

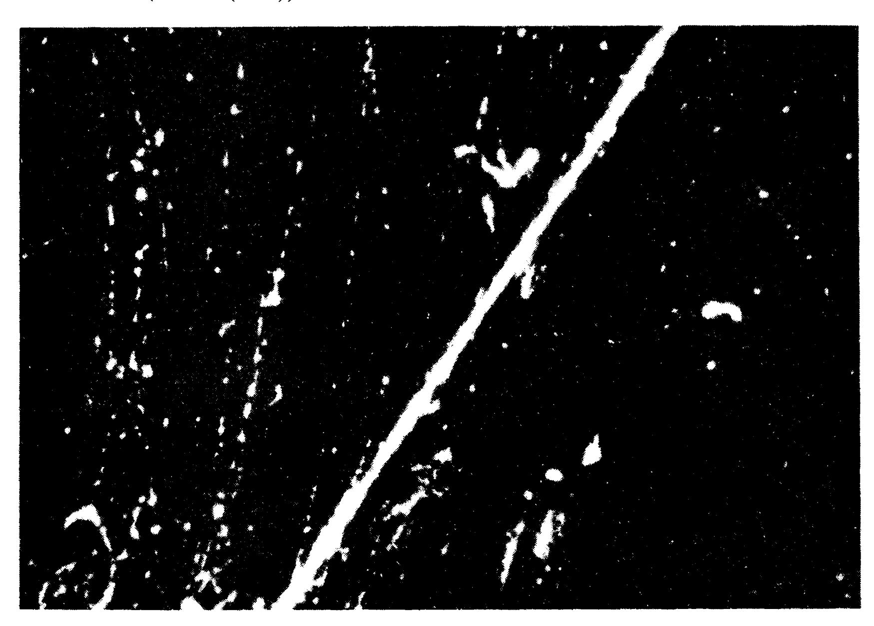


Abb. (6–8) β-Strahlen in einer Nebelkammer. Aus D. S. BALEY u. H. R. CRANE: Physic. Rev. **52** (1937) 604.

Als Absorber für β-Strahlung benutzt man meist feste Stoffe, vorzugsweise Aluminium. Die Schichtdicke der Aluminiumbleche gibt man durch das Flächengewicht an (mg/cm^2). Die Absorptionskurve (Abb. (6–9)) zeigt annähernd einen exponentiellen Verlauf:

$$I = I_0 e^{-\mu d}; \tag{6.8}$$

I ist die Intensität der Strahlung bzw. die Impulsrate, μ der Absorptionskoeffizient und d die Schichtdicke. Dieser exponentielle Verlauf ist zufälliger Natur; er ist bedingt durch die kontinuierliche Energieverteilung und die Streuung der β-Strahlung im Absorber. Die Absorptionskurve geht über in einen nahezu konstanten Endwert, der durch die Bremsstrahlung hervorgerufen wird. Durch Extrapolation der Absorptionskurve (Abb. (6–9)) ermittelt man die maximale Reichweite $R_{\max}$ in Aluminium. Diese Extrapolation wird meist so ausgeführt, daß man die Absorptionskurve nach Abzug des Anteils für die Bremsstrah-

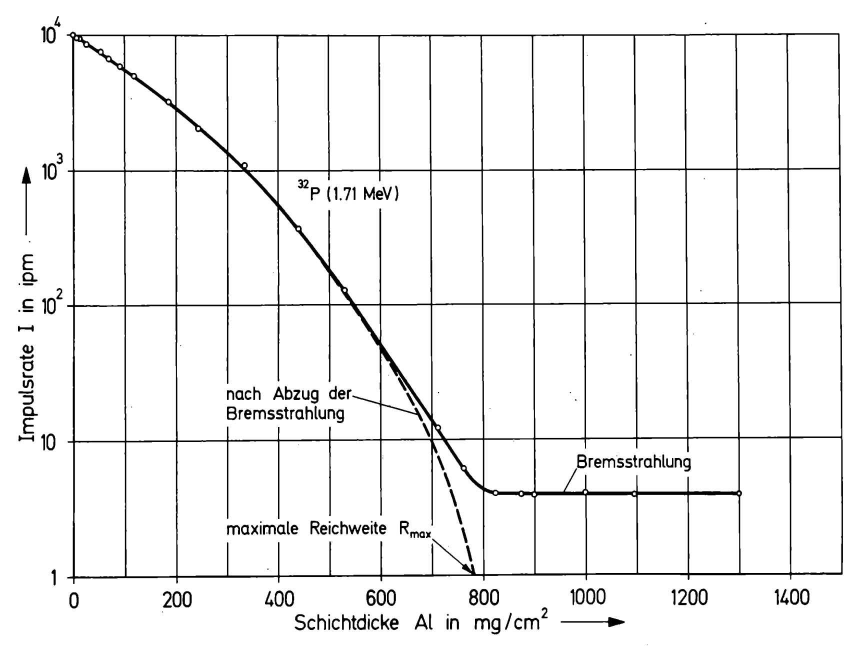


Abb. (6–9) Absorptionskurve für β-Strahlung (P–32; 1,71 MeV).

lung bis zum Schnittpunkt mit der Geraden $I = 10^{-4} \cdot I_0$ verlängert. Diese Methode führt im allgemeinen zu ebenso guten Ergebnissen wie rechnerische oder andere graphische Auswerteverfahren. β^+- und β^--Strahlung liefern ungefähr die gleichen Absorptionskurven. Mit Hilfe einer Eichkurve (Abb. (6–10)) kann man dann aus der Reichweite R_{max} die Energie E_{max} der β-Strahlung bestimmen.

Die monoenergetischen Elektronen, die bei der inneren Konversion ausgesandt werden (Konversionselektronen), zeigen im Gegensatz zur β-Strahlung einen annähernd linearen Verlauf der Absorptionskurve, sofern ihre Energie größer ist als etwa 0,2 MeV (Abb. (6–11)); man beachte, daß in dieser Abbildung die Impulsrate in einem linearen Maßstab aufgetragen ist. Um die „effektive“ Reichweite dieser monoenergetischen Elektronen zu erhalten, extrapoliert man den linearen Teil der Kurve auf $I = 0$. Bei Energien < 0,2 MeV findet man zunehmend stärkere Abweichungen vom linearen Verlauf.

Bei der Wechselwirkung der β-Strahlung mit Materie unterscheidet man mehrere Vorgänge:

a) Wechselwirkung mit Elektronen: Dabei findet eine Ionisation statt. Für diese Art der Wechselwirkung ist nur die Elektronendichte des Absorbers wichtig; d. h. die Absorptionseigenschaften einer Sub-

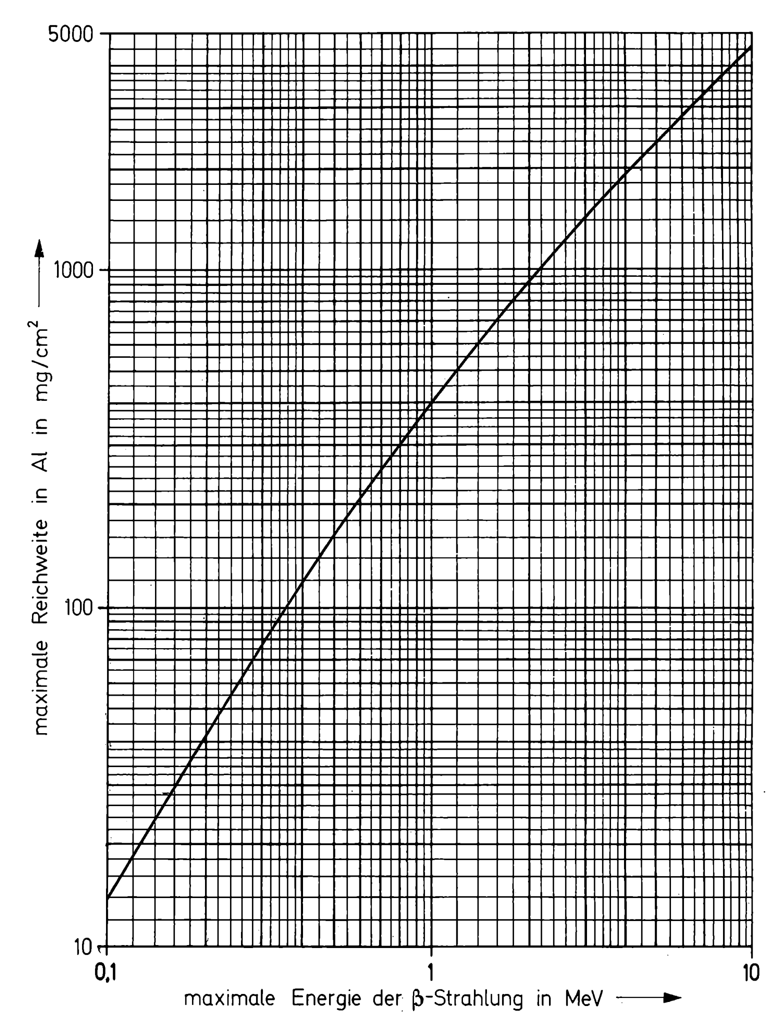


Abb. (6–10) Reichweite von β-Strahlen in Aluminium als Funktion der Energie. Nach L. KATZ u. A. S. PENFOLD: Rev. mod. Physics **24** (1952) 28.

stanz sind in erster Linie von dem Quotienten Z/A abhängig (Elektronenzahl pro Masseneinheit; Z=Ordnungszahl, A=Massenzahl). Das wird durch den Vergleich der maximalen Reichweite von 1 MeV β-Strahlung in Aluminium und in Gold deutlich (Tab. 6.3.).

b) Wechselwirkung mit Atomkernen: Sie ist vor allen Dingen bei energiereicher β-Strahlung von Bedeutung. Im elektrischen Feld eines Atomkerns senden energiereiche Elektronen eine kontinuierliche Röntgenstrahlung aus (Bremsstrahlung) und verlieren dabei Energie.

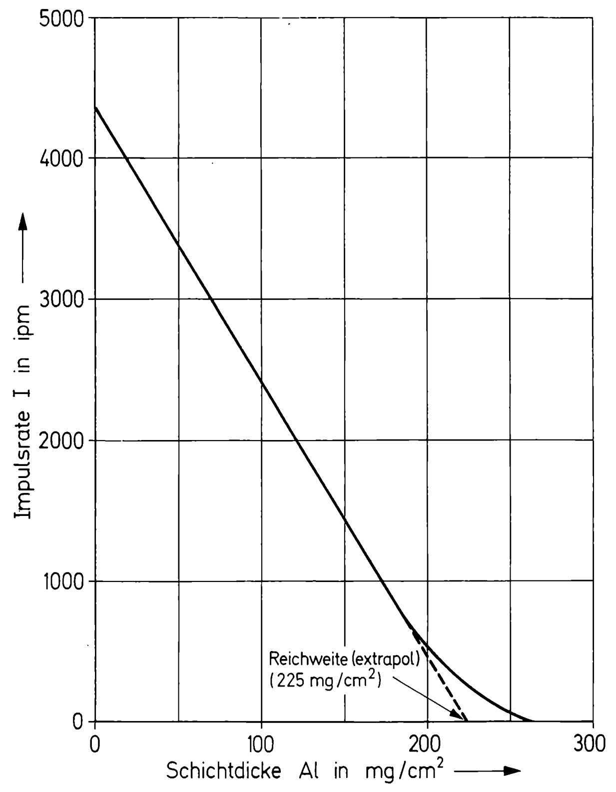


Abb. (6–11) Absorptionskurve für Konversionselektronen (Ba–137m).

Der Energieverlust durch Bremsstrahlung ist proportional der Ordnungszahl der Atomkerne und der Energie der β-Strahlung. Für das Verhältnis Energieverlust durch Bremsstrahlung zu Energieverlust durch Ionisation gilt näherungsweise folgende Beziehung:

$$\frac{\Delta E_{\text{Bremsstr.}}}{\Delta E_{\text{Ionis.}}} = \frac{EZ}{800} \tag{6.9}$$

(E= Energie in MeV; Z= Ordnungszahl).

c) Rückstreuung: Wählt man die in Abb. (6–12) skizzierte Anordnung, wobei die β-Strahlung nicht direkt ins Zählrohr gelangen kann, so beobachtet man eine Impulsrate, die in erster Linie von der Ordnungszahl des Absorbers, außerdem von der Energie der β-Strahlung abhängig ist. Diese Erscheinung bezeichnet man als Rückstreuung. Die Abhängigkeit der Rückstreuung von der Ord-

Tabelle 6.3.
Maximale Reichweite von β-Strahlen in verschiedenen Stoffen

Energie der Strahlung in MeV	Absorber	Z/A	R_{max} in mg/cm²
1	Aluminium	13/27 = 0,48	400
1	Gold	79/197 = 0,40	500
0,156 (^{14}C)	Wasser	8/18 = 0,44	240
	Aluminium	0,48	200
1,71 (^{32}P)	Wasser	0,44	810
	Aluminium	0,48	800

nungszahl und von der Energie der β-Strahlung ist in Abb. (6–13) aufgezeichnet. Diese Abbildung läßt erkennen, daß die Rückstreuung bei hohen Ordnungszahlen des Absorbers beträchtliche Werte annehmen kann.

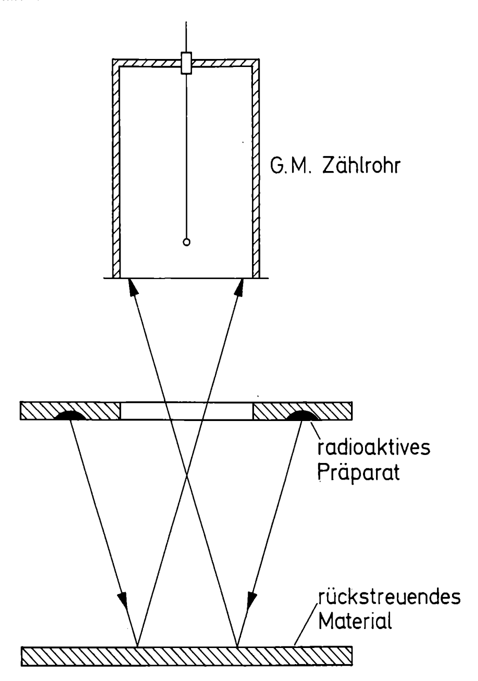


Abb. (6–12) Anordnung zur Messung der Rückstreuung.

Bei der Wechselwirkung der β^+-Strahlung mit Materie ist zu beachten, daß die Positronen nach Verlust ihrer kinetischen Energie mit

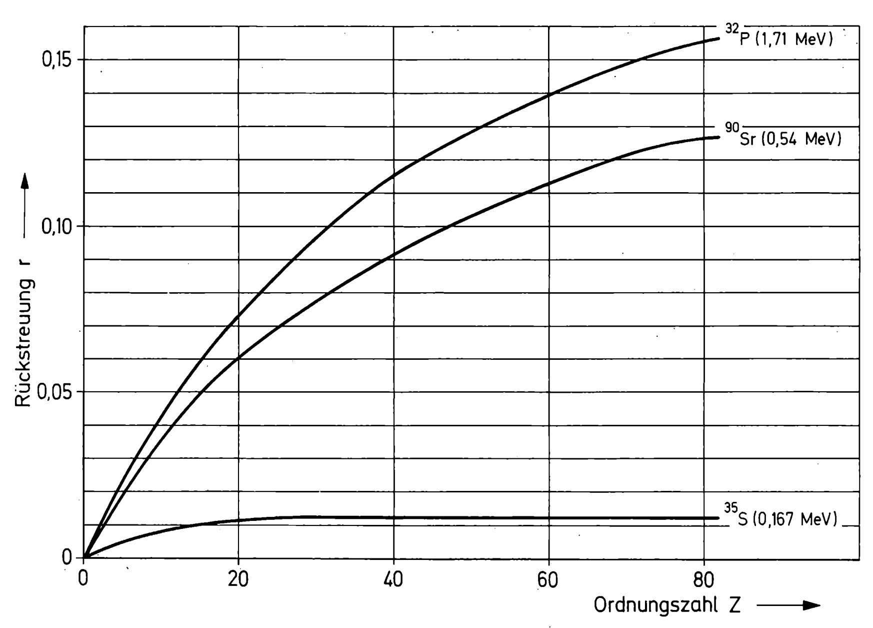


Abb. (6–13) Rückstreuung von β-Strahlung verschiedener Energie als Funktion der Ordnungszahl.

Elektronen reagieren, wobei zwei γ-Quanten mit einer Energie von je 0,511 MeV entstehen, die sich in entgegengesetzter Richtung bewegen (Vernichtungsstrahlung, vgl. Abschn. 2.3.). Auf Grund dieser Vernichtungsstrahlung kann die β^+-Strahlung nachgewiesen werden.

6.3.2. Energiebestimmung

Eine einfache Methode zur Bestimmung der Maximalenergie E_{max} von β-Strahlung ist die Aufnahme einer Absorptionskurve und die Ermittlung von E_{max} aus der durch Extrapolation gefundenen maximalen Reichweite R_{max}. Dabei wird meistens die in Abb. (6–10) wiedergegebene Eichkurve benutzt; manchmal werden auch Näherungsformeln verwendet. Wegen der Fehler bei der Bestimmung von R_{max} sind die Ergebnisse im allgemeinen nicht allzu genau; sie sind mit einem Fehler von etwa 1 bis zu einigen Prozent behaftet.

Genauere Werte liefert auch in diesem Fall ein magnetischer Spektrograph. Dabei arbeitet man jedoch wegen der größeren e/m-Werte mit erheblich kleineren Feldstärken als bei α-Strahlen. Elektronen bzw. Positronen besitzen aber bei gleicher Energie sehr viel höhere Geschwindigkeit als α-Teilchen; deshalb ist bei den β-Strahlen stets eine

relativistische Korrektur erforderlich. Die Geschwindigkeit der β-Teilchen ergibt sich aus der Beziehung

$$v = Br \frac{e}{m_0} \sqrt{1 - \left(\frac{v}{c}\right)^2}, \tag{6.10}$$

vgl. Gl. (6.7). Die kinetische Energie beträgt

$$E = \frac{m_0 v^2}{2\sqrt{1 - \left(\frac{v}{c}\right)^2}} = mc^2 - m_0 c^2 = m_0 c^2 \left[\frac{1}{\sqrt{1 - \left(\frac{v}{c}\right)^2}} - 1\right]; \tag{6.11}$$

m_0 ist die Ruhemasse des Elektrons, e die elektrische Elementarladung, B die Induktionsflußdichte und r der Bahnradius im magnetischen Spektrographen. Auf der photographischen Platte des Spektrographen wird wegen der kontinuierlichen Energieverteilung eine kontinuierliche Schwärzung erhalten, die im Bereich höherer Energie verhältnismäßig diffus ausläuft, so daß eine genaue Bestimmung der Maximalenergie schwierig ist. Deshalb benutzt man zweckmäßigerweise ein magnetisches Spektrometer, in dem die Zahl der Elektronen,

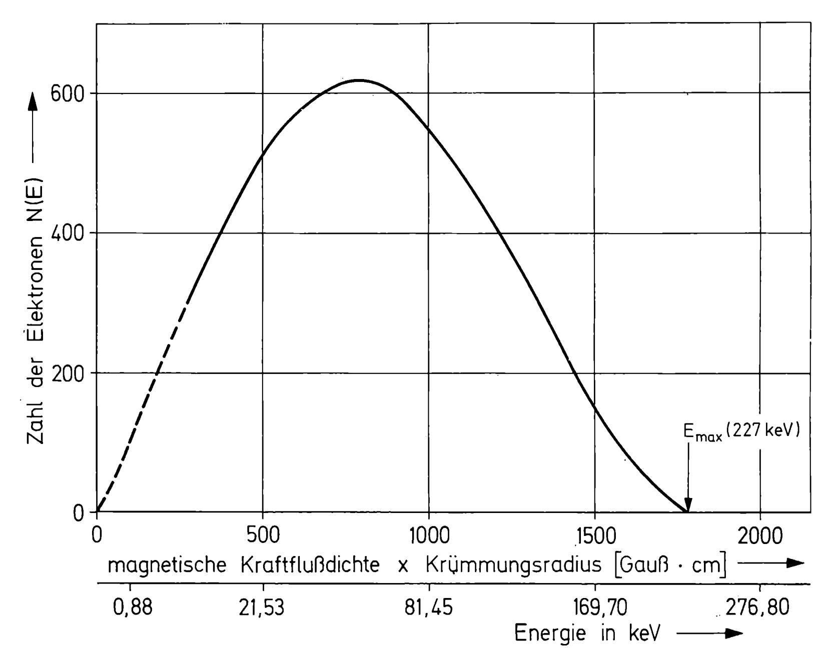


Abb. (6–14) β-Spektrum des Pm–147. Nach L. LIDOFSKY, P. MACKLIN u. C. S. WU: Physic. Rev. **76** (1949) 1888.

die eine bestimmte Energie besitzen, mit einem Zähler gemessen wird. Man erhält dann eine Kurve, wie sie in Abb. (6–14) wiedergegeben ist. Aus dieser Kurve wird die Maximalenergie E_{max} direkt abgelesen.

Wenn β-Strahlung sich in einer durchsichtigen Substanz (z. B. Wasser oder Plexiglas) ausbreitet, beobachtet man Čerenkov-Strahlung. Diese tritt immer dann auf, wenn sich geladene Teilchen mit einer höheren Geschwindigkeit v bewegen, als der Lichtgeschwindigkeit in der betreffenden Substanz entspricht:

$$v \geqslant \frac{c}{n}; \tag{6.12}$$

c ist die Lichtgeschwindigkeit im Vakuum und n der Brechungsindex der Substanz. Für β-Teilchen ist die Beziehung (6.12) bereits bei verhältnismäßig niedriger Energie erfüllt, im Gegensatz zu Protonen und α-Teilchen. Die Čerenkov-Strahlung ist intensiv blau und wird auf einem Kegel ausgesandt. Das geladene Teilchen ist vergleichbar mit einer Schallquelle, die sich schneller als mit Schallgeschwindigkeit bewegt und einen „Machschen Kegel" hinter sich herzieht. Für den Öffnungswinkel α des Kegels gilt

$$\sin\alpha = \frac{c}{nv}. \tag{6.13}$$

Die Messung des Winkels α mit Hilfe eines Čerenkov-Zählers erlaubt somit eine Bestimmung der Geschwindigkeit und damit auch der Energie von Elektronen und anderen geladenen Teilchen.

6.4. γ-Strahlung

6.4.1. Absorption

Zwischen γ-Strahlung und Röntgenstrahlung besteht kein Unterschied prinzipieller Natur. Man unterscheidet diese beiden Strahlungsarten nur nach ihrer Herkunft. Die Röntgenstrahlung kommt aus der Elektronenhülle. Sie wird ausgesandt, wenn bei Elementen mittlerer bzw. höherer Ordnungszahl in den inneren Elektronenschalen Elektronen von Zuständen höherer Energie in Zustände niedrigerer Energie übergehen (charakteristische Röntgenstrahlung) oder wenn energiereiche Elektronen im Kraftfeld der Atomkerne abgebremst werden (Bremsstrahlung). Die γ-Strahlung kommt aus dem Atomkern.

Sie wird ausgesandt, wenn der Atomkern von einem angeregten Zustand in einen Zustand niedrigerer Energie übergeht. Der Energiebereich der Röntgenstrahlung ist etwa 100 eV bis 0,1 MeV, der Wellenlängenbereich etwa 100 Å bis 0,1Å. Der Energiebereich der γ-Strahlung ist etwa 10 keV bis 10^4 MeV, der Wellenlängenbereich etwa 1 Å bis 10^{-6} Å. Wenn sehr energiereiche Elektronen ($E > 10$ MeV) auf Stoffe mit höherer Ordnungszahl auftreffen, so entsteht eine sehr energiereiche („harte") Bremsstrahlung, die wegen ihrer hohen Energie ebenfalls als γ-Strahlung bezeichnet wird. Diese harte Bremsstrahlung wird häufig in Beschleunigern erzeugt und für Kernreaktionen oder für andere kernchemische bzw. kernphysikalische Untersuchungen verwendet. Sie hat jedoch im Gegensatz zu der monoenergetischen γ-Strahlung aus den Atomkernen eine kontinuierliche Energieverteilung.

Die Absorption von γ-Strahlung und Röntgenstrahlung verläuft grundsätzlich anders als die Absorption von Partikeln. Letztere verlieren ihre Energie in einer Vielzahl von aufeinanderfolgenden Zusammenstößen. Die γ-Quanten besitzen keine Ladung. Ihre Wechselwirkung mit Materie ist deshalb sehr gering. In den meisten Fällen verschwinden sie bei einem einzigen Absorptionsprozeß. Deshalb kann man für γ-Strahlung keine maximale Reichweite angeben. Ihre Absorption erfolgt nach einem echten exponentiellen Gesetz:

$$I = I_0 e^{-\mu d} \tag{6.14}$$

(μ=Absorptionskoeffizient, d=Schichtdicke). Dieses Gesetz gilt streng nur für eine monoenergetische γ-Strahlung, ein schmales Strahlenbündel und dünne Absorber. Für Absorptionsmessungen mit γ-Strahlen verwendet man meistens Blei als Absorber. Die Absorptionskurve für Cs–137 ist in Abb. (6–15) aufgezeichnet.

Der Zusammenhang zwischen der Energie der γ-Strahlung und ihrer Absorption wird meist durch die Halbwertsdicke $d_{1/2}$ charakterisiert. Dies ist die Schicht eines Absorbers, welche die Intensität der γ-Strahlung auf die Hälfte herabsetzt. Aus Gl. (6.14) folgt

$$d_{1/2} = \frac{\ln 2}{\mu}. \tag{6.15}$$

Die Halbwertsdicke ist in Abb. (6–15) eingezeichnet. 7 Halbwertsdicken vermindern die Anfangsintensität der γ-Strahlung etwa auf

1%, 10 Halbwertdicken auf etwa 1‰. Für den praktischen Strahlenschutz ist es zweckmäßig sich zu merken, daß die Intensität einer γ-Strahlung von 1 MeV Energie durch 5 cm Blei oder durch 25 cm Beton auf etwa 1% herabgesetzt wird.

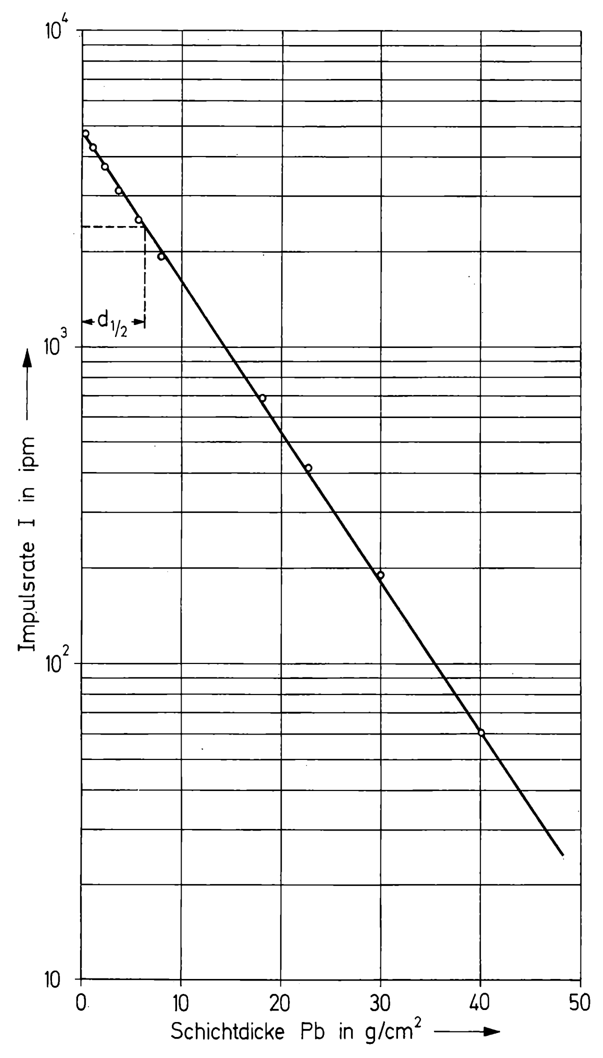


Abb. (6–15) Absorptionskurve für γ-Strahlung (Cs–137).

Interessant ist eine Gegenüberstellung der Absorption der verschiedenen Strahlungsarten: α-Strahlung von 1 MeV wird durch einen Absorber mit einer Schichtdicke von 0,8 mg/cm² quantitativ absorbiert (das entspricht etwa einem Blatt Papier). β-Strahlung von 1 MeV

wird durch einen Absorber mit einer Schichtdicke von 450 mg/cm^2 ebenfalls quantitativ absorbiert (das entspricht einem dünnen Buch); die Bremsstrahlung wird durch diesen Absorber allerdings nicht vollständig zurückgehalten. γ-Srahlung von 1 MeV wird durch einen Absorber mit einer Schichtdicke von 220 g/cm^2 auf den 10^{-6}-ten Teil der Anfangsintensität abgeschwächt, aber nicht vollständig absorbiert. (Somit ist auch die „Schichtdicke“ eines 24-bändigen Lexikons zur vollständigen Absorption der γ-Strahlung unzureichend.)

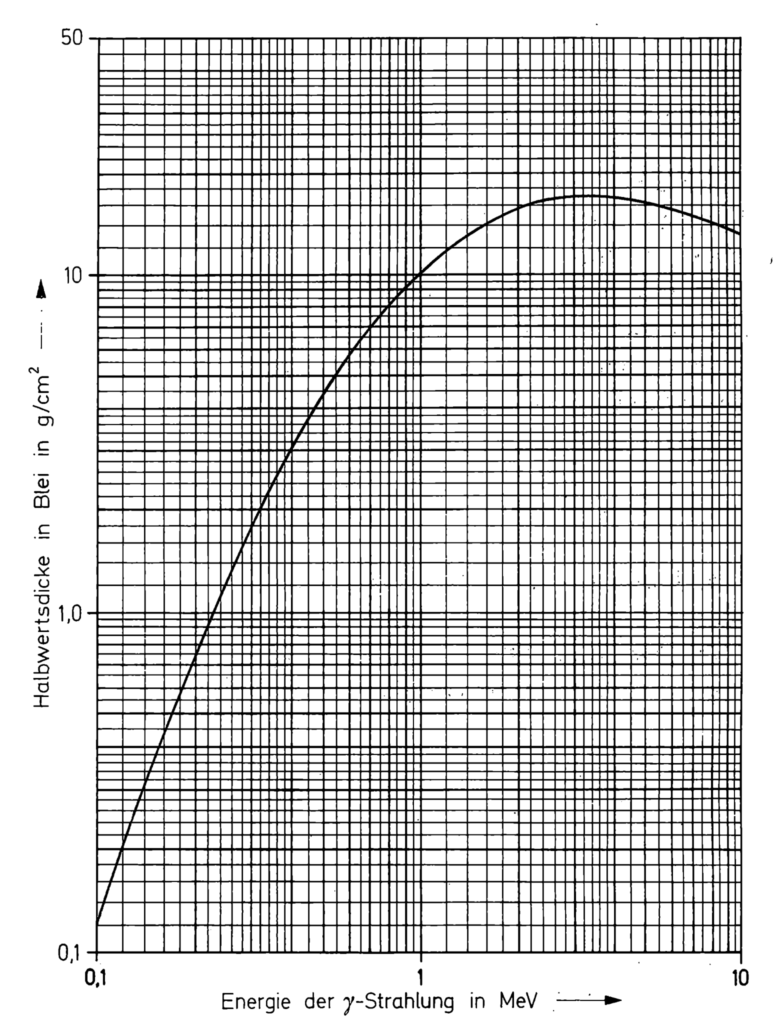


Abb. (6–16) Halbwertsdicke der γ-Strahlung als Maß für die Energie. Nach C. M. DAVISSON u. R. D. EVANS: Rev. mod. Physics **24** (1952) 79.

Die Halbwertsdicke dient als Maß für die Energie der γ-Strahlung. Aus einer Eichkurve (Abb. (6–16)) kann die Energie abgelesen werden. Für größere Halbwertsdicken ist diese Eichkurve zweideutig. Diese Besonderheit beruht auf der Überlagerung verschiedener Absorptionsmechanismen.

6.4.2. Absorptionsmechanismen

Die Absorption der γ-Strahlung ist — ähnlich wie die Absorption der α-Strahlung und der β-Strahlung — in erster Linie abhängig von der Dichte des Absorbers. Dies geht aus Tab. 6.4. hervor, in welcher der Massenabsorptionskoeffizient μ/ρ für verschiedene Absorber und verschiedene γ-Energien angegeben ist. Der Massenabsorptionskoeffizient ist umgekehrt proportional dem Produkt aus der Dichte und der Halbwertsdicke; dies folgt aus Gl. (6.15):

$$\frac{\mu}{\rho} = \frac{\ln 2}{\rho\, d_{1/2}}. \tag{6.16}$$

Für die Absorption der γ-Strahlung sind in erster Linie drei Vorgänge verantwortlich.

a) Der photoelektrische Effekt: Dabei gibt das γ-Quant seine Energie an ein Elektron ab, das als Photoelektron bezeichnet wird (Abb.

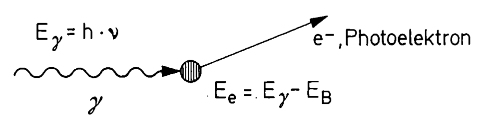


Abb. (6–17) Photoeffekt.

(6–17)). Die Energie E_e des Photoelektrons ist gleich der Energie des γ-Quants, abzüglich der Bindungsenergie E_B des Elektrons

$$E_e = E_\gamma - E_B. \tag{6.17}$$

Letztere ist im allgemeinen klein gegenüber der Energie eines γ-Quants.

b) Der Compton-Effekt: Dabei gibt das γ-Quant nur einen Teil seiner Energie an ein Elektron ab (Abb. (6–18)); d. h. das γ-Quant er-

Tabelle 6.4.
Massenabsorptionskoeffizienten für γ-Strahlen verschiedener Energie (μ/ρ in cm^2/g)

$E\gamma$ in MeV	Stickstoff	Wasser	Kohlenstoff	Natrium	Aluminium	Eisen	Kupfer	Blei
0,1022	0,1498	0,165	0,1487	0,1532	0,1643	0,3589	0,4427	5,30
0,2554	0,1128	0,1255	0,1127	0,1086	0,1099	0,1186	0,1226	0,558
0,5108	0,0862	0,096	0,0862	0,0827	0,0833	0,0824	0,0814	0,149
1,022	0,0629	0,0697	0,0629	0,0603	0,0607	0,0590	0,0580	0,0682
2,043	0,0439	0,0488	0,0438	0,0422	0,0427	0,0420	0,0414	0,0442
5,108	0,0270	0,0298	0,0266	0,0271	0,0286	0,0312	0,0315	0,0434
10,22	—	0,0216	—	—	0,0226	—	—	0,0537

Berechnet aus Werten von: CH. M. DAVISSON, R. D. EVANS: Rev. mod. Physics **24** (1952) 79.

fährt eine Streuung. Der Stoß zwischen dem γ-Quant und dem Elektron kann nach dem Impulssatz behandelt werden. Daraus folgt

$$\frac{h\nu_0}{c} = \frac{h\nu}{c} + \frac{m_0 v}{\sqrt{1-\left(\frac{v}{c}\right)^2}}; \qquad (6.18)$$

$\frac{h\nu_0}{c}$ ist der Impuls des auftreffenden γ-Quants, $\frac{h\nu}{c}$ der Impuls des

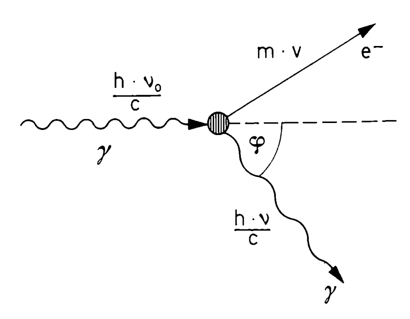


Abb. (6–18) Compton-Effekt.

gestreuten γ-Quants und $mv = \frac{m_0\, v}{\sqrt{1-\left(\frac{v}{c}\right)^2}}$ der Impuls des Elektrons (die relativistische Massenzunahme des Elektrons bei hoher Geschwindigkeit ist in diesem Ausdruck enthalten). Berücksichtigt man die Winkelabhängigkeit der Streuung, so erhält man für die Energie E des gestreuten Photons

$$E = E_0 \frac{1}{1 + qE_0}, \qquad (6.19)$$

worin $q = \frac{1-\cos\varphi}{m_0 c^2}$ ist; die kinetische Energie E_e des Elektrons beträgt

$$E_e = E_0 \frac{q\,E_0}{1 + qE_0}. \qquad (6.20)$$

c) Die Paarbildung: Im elektrischen Feld eines Atomkerns kann aus einem γ-Quant ein Elektron und ein Positron entstehen, sofern die Energie des γ-Quants gleich oder größer ist, als der Ruhemasse der beiden Teilchen (Elektron und Positron) entspricht: $E \geqslant 2m_0c^2 =$

= 1,02 MeV. Die Paarbildung ist somit die Umkehrung der Vernichtungsstrahlung (vgl. Abschn. 6.3.1.). Die Wahrscheinlichkeit der Paarbildung steigt oberhalb 1,02 MeV sehr stark mit der Energie der γ-Strahlung an und macht bei höherer Energie (oberhalb von etwa 10 MeV) den Hauptteil der Absorptionsvorgänge aus. Die Paarbildung ist außerdem dem Quadrat der Ordnungszahl des Absorbers proportional.

Der Gesamtabsorptionskoeffizient μ läßt sich darstellen als Summe der partiellen Absorptionskoeffizienten infolge des Photoeffekts μ_{Ph}, des Compton-Effekts μ_{C} und der Paarbildung μ_{P}:

$$\mu = \mu_{\mathrm{Ph}} + \mu_{\mathrm{C}} + \mu_{\mathrm{P}}. \tag{6.21}$$

Die Beiträge dieser einzelnen Effekte zum Absorptionskoeffizienten μ der γ-Strahlung in Blei sind aus Abb. (6–19) ersichtlich. Der starke Anstieg des Absorptionskoeffizienten bei höheren γ-Energien auf Grund der Paarbildung bewirkt das Umbiegen der Kurve in Abb. (6–16). In Abb. (6–20) ist der Gesamtabsorptionskoeffizient der γ-Strahlung in verschiedenen Stoffen als Funktion der Energie aufgezeichnet. Der starke Einfluß der Ordnungszahl tritt in dieser Abbildung deutlich hervor, insbesondere der Rückgang des Anteils der Paarbildung in Absorbern mit kleinerer Ordnungszahl.

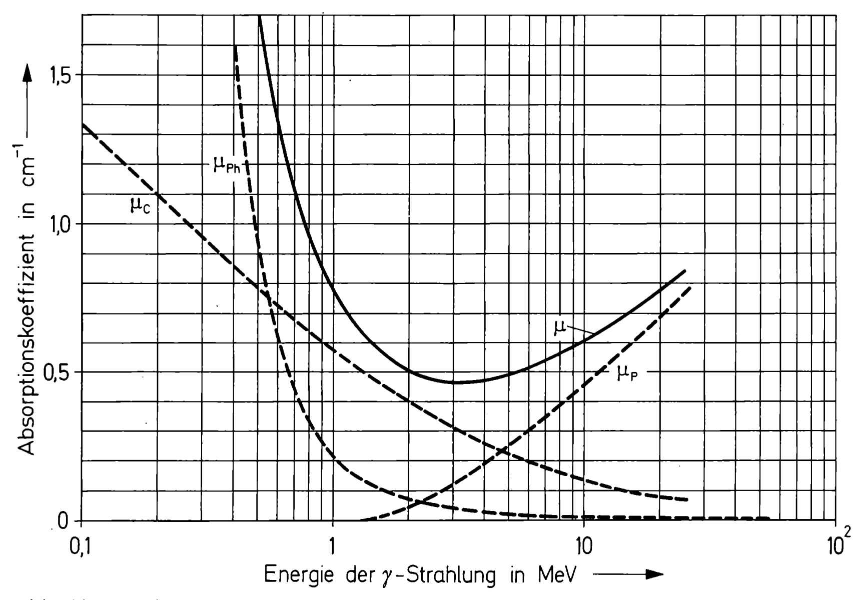


Abb. (6–19) Absorptionskoeffizienten für γ-Strahlung in Blei. Nach C. M. DAVISSON u. R. D. EVANS: Rev. mod. Physics **24** (1952) 79.

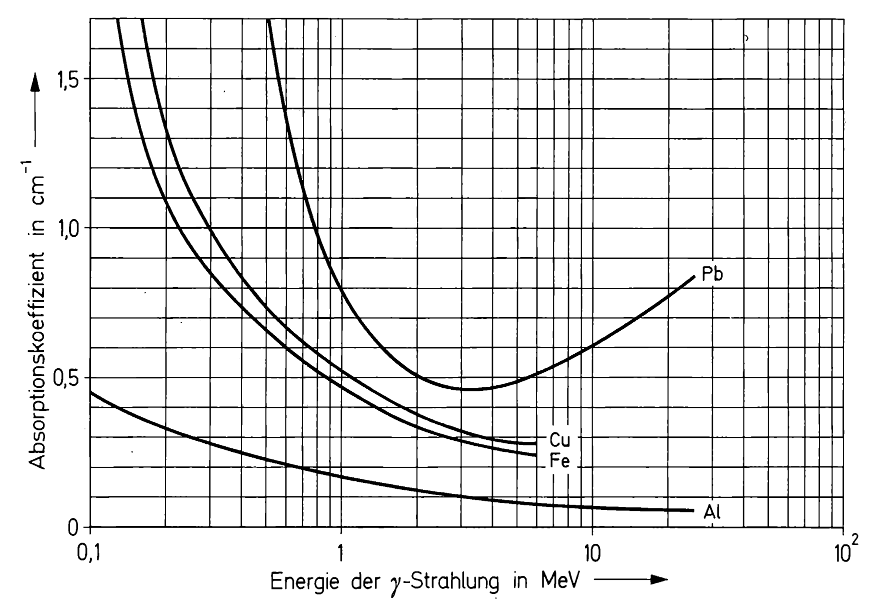


Abb. (6–20) Gesamtabsorptionskoeffizient für γ-Strahlung in verschiedenen Stoffen als Funktion der Energie. Nach C. M. DAVISSON u. R. D. EVANS: Rev. mod. Physics **24** (1952) 79.

Außer den unter a), b) und c) besprochenen Vorgängen spielen die folgenden Wechselwirkungen der γ-Strahlung mit dem Absorber nur eine untergeordnete Rolle:

d) Bei niedriger Energie der γ-Strahlung findet eine kohärente Streuung durch die Atome oder Moleküle des Absorbers statt — ähnlich wie bei der Röntgenstrahlung.

e) Bei hoher Energie der γ-Strahlung werden in steigendem Maße Kernreaktionen ausgelöst (nuklearer photoelektrischer Effekt, Kernphotoreaktionen wie (γ, n)-Reaktionen, vgl. Kap. 8).

f) Außerdem tritt an den Atomkernen in geringem Umfang Thomson- und Compton-Streuung ein.

Diese Wechselwirkungen werden nicht näher diskutiert, weil sie in diesem Zusammenhang nur geringe Bedeutung besitzen.

6.4.3. Energiebestimmung

Die Energiebestimmung von γ-Strahlen aus der Halbwertsdicke (Abb. (6–16)) durch Aufnahme einer Absorptionskurve (vgl. Abb. (6–15)) liefert nur verhältnismäßig ungenaue Werte, die mit einem Fehler von etwa 10% behaftet sein können. Außerdem findet man in bestimmten Energiebereichen zwei verschiedene Werte (Abb. (6–16)).

Eine sehr viel benutzte Methode zur Messung und Identifizierung von Radionukliden ist die γ-Spektrometrie mit Hilfe von Szintillationszählern. Dabei werden meist Mehrkanalspektrometer benutzt, die im Gegensatz zu den Einkanalspektrometern sofort das gesamte Spektrum, verteilt auf eine bestimmte Zahl von Kanälen, liefern. Bei einer Eichung mit γ-Strahlen bekannter Energie können die Energiewerte verhältnismäßig genau abgelesen werden (mit einem Fehler von etwa 1%). Beispiele solcher γ-Spektren sind in den Abbn. (6–21) und (6–22) wiedergegeben. Charakteristisch für die γ-Spektren sind die „Photopeaks"; denn nur beim Photoeffekt wird die gesamte Energie der γ-Quanten in einem Schritt abgegeben. Das „Compton-Kontinuum", das bei niedrigerer Energie beobachtet wird, beruht auf dem Compton-Effekt. Bei Cs–137 tritt nur ein Photopeak auf (Abb. (6–21)), bei Co–60 zwei (Abb. (6–22)); d. h. die γ-Strahlung ist im ersten Fall monoenergetisch ($E = 0{,}66$ MeV), während Co–60 γ-Quanten verschiedener Energie aussendet (1,17 und 1,33 MeV). Verwendet man an Stelle der Szintillationszähler als Detektoren Kristallzähler (z. B. einen Germaniumkristall, der mit Lithium dotiert ist), so kann man sehr viel

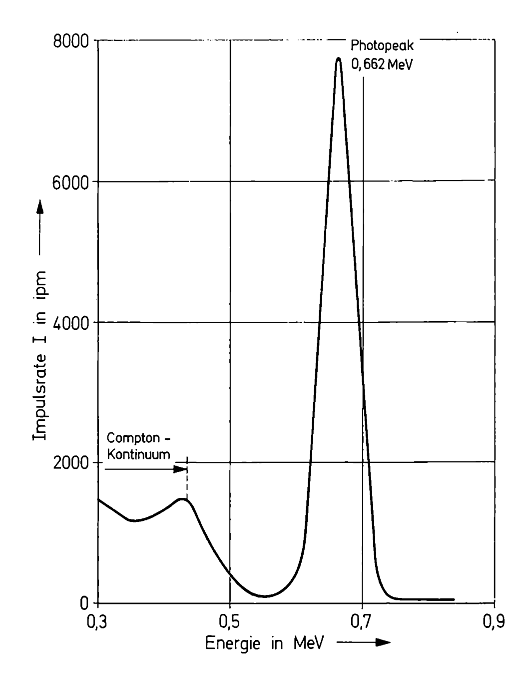


Abb. (6–21) γ-Spektrum des Cs–137 (aufgenommen mit einem NaJ-Kristall); die γ-Quanten stammen aus der isomeren Umwandlung des kurzlebigen Ba–137 m ($t_{1/2} = 2{,}55$ min), das aus Cs–137 entsteht.

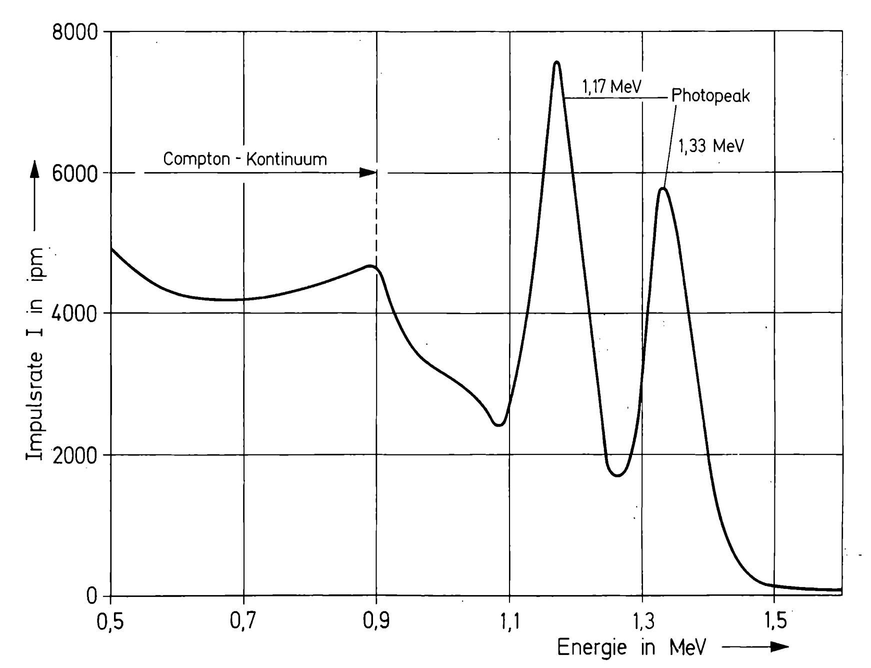


Abb. (6–22) γ-Spektrum des Co–60 (aufgenommen mit einem NaJ–Kristall).

schärfere γ-Spektren — d. h. Spektren mit geringerer Linienbreite — erhalten. Die bessere Auflösung ist wichtig, wenn die Energien der γ-Quanten nahe beieinander liegen.

Sehr genaue Energiemessungen sind mit einem Kristall- oder einem Gitterspektrometer möglich, wobei die γ-Strahlen in dem Kristall bzw. Gitter gebeugt werden. Ebenso wie bei Röntgenstrahlung wird aus dem Beugungswinkel φ die Wellenlänge λ der γ-Strahlung nach der Braggschen Gleichung

$$\lambda = 2d \sin \varphi \tag{6.22}$$

berechnet (d ist der Abstand der Netzebenen im Kristall bzw. im Gitter). Diese Methode liefert allerdings oberhalb von etwa 1 MeV nur noch verhältnismäßig ungenaue Werte. Außerdem sind sehr hohe Aktivitäten erforderlich.

Bei hohen γ-Energien kann man mit einem Paarspektrometer genaue Energiebestimmungen ausführen. Dabei werden die in einer dünnen Absorberfolie gebildeten Elektronen und Positronen im magnetischen Feld abgelenkt, und ihre Energie wird bestimmt. Durch eine

Koinzidenzschaltung werden nur die Positronen und Elektronen gemessen, die gleichzeitig entstehen. Die Energie der γ-Quanten ergibt sich aus der Summe der Energien des Elektrons und des Positrons — die aus dem Bahnradius im Magnetfeld bestimmt werden — und der Ruhemasse m_0 der beiden Teilchen:

$$E\gamma = E_{e-} + E_{e+} + 2m_0c^2. \tag{6.23}$$

6.5. Messung radioaktiver Strahlung

6.5.1. Ionisationsdetektoren

In den vorausgehenden Abschnitten wurden im Zusammenhang mit der Frage der Energiebestimmung bereits einige Detektoren für radioaktive Strahlung erwähnt. Der Nachweis der radioaktiven Strahlung beruht entweder auf den Ionisations- oder auf den Anregungsprozessen, die in Gasen bzw. in festen Stoffen durch die Strahlung ausgelöst werden. Bei folgenden Strahlungsdetektoren wird die Ionisation in

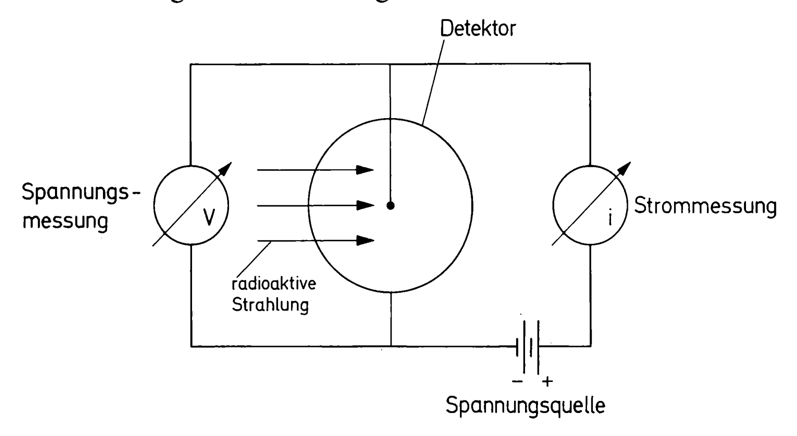


Abb. (6–23) Meßanordnung für Ionisationsdetektoren.

Gasen ausgenutzt: Geiger-Müller-Zähler, Proportionalzähler und Ionisationskammer. In diesen Detektoren werden durch die radioaktive Strahlung im Gasraum Ionen und Elektronen erzeugt und an den Elektroden gesammelt. Die Anordnung ist schematisch in Abb. (6–23) wiedergegeben. Legt man an die Elektroden eine langsam ansteigende Spannung, so gelangen die unter dem Einfluß der radioaktiven Strahlung gebildeten Ionen in wachsendem Umfang an die Elektroden. Schließlich wird ein Sättigungsstrom erreicht, wenn alle

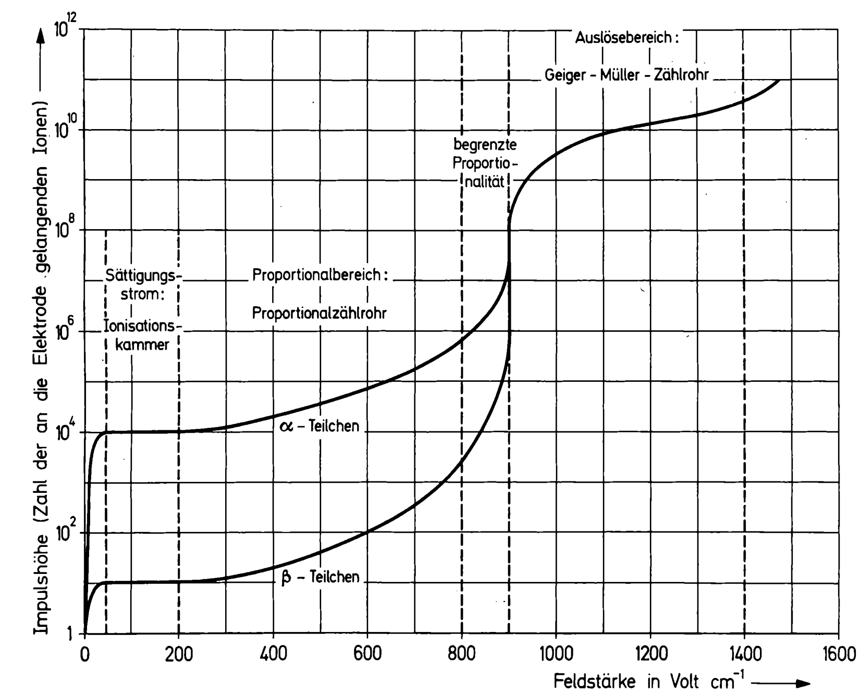


Abb. (6–24) Impulshöhe als Funktion der Feldstärke.

Ionen an den Elektroden gesammelt werden. Dies ist in Abb. (6–24) aufgezeichnet; in dieser Abbildung ist die Größe des von der Anordnung registrierten Impulses, der von einem α-Teilchen, β-Teilchen oder einem γ-Quant erzeugt wird, als Funktion der Feldstärke angegeben. Im Bereich des Sättigungsstromes arbeitet die Ionisationskammer. Da die spezifische Ionisation im Falle der α-Teilchen erheblich höher ist als im Falle der β-Teilchen, erzeugt ein α-Teilchen im Gasraum der Ionisationskammer einen erheblich höheren Impuls als ein β-Teilchen.

Geht man davon aus, daß das α-Teilchen seine Energie E in derIonisationskammer vollständig abgibt, so erzeugt es dabei insgesamt $N = E_\alpha/E_\mathrm{I}$ Ionen. E_I ist die Energie, die für einen Ionisationsvorgang — d. h. für die Bildung eines Ionenpaares — verbraucht wird ($E_\mathrm{I} \approx 35$ eV). Ein α-Teilchen mit einer Energie von $E_\alpha = 3{,}5$ MeV erzeugt somit etwa 10^5 Ionenpaare. Dies entspricht einem Stromstoß von der Stärke

$$i = Ne = 10^5 \cdot 1{,}602 \cdot 10^{-19} \approx 10^{-14}\,\mathrm{A\,s}. \qquad (6.24)$$

Solche kleinen Stromstöße können nur mit Hilfe eines leistungsfähigen Verstärkers gemessen werden. Wichtig ist dabei, daß die Elek-

troden der Ionisationskammer sehr gut gegeneinander isoliert sind (z. B. durch eine Teflon-Isolierung und einen geerdeten Schutzring). Die Verstärkung kann mit Hilfe einer Elektrometerröhre oder eines Gleichstromverstärkers erfolgen; vorzugsweise verwendet man aber einen Schwingkondensatormeßverstärker, der die Vorteile der Wechselstromverstärkung aufweist. β-Strahlen liefern in einer Ionisationskammer so geringe Stromstärken, daß sie kaum nachweisbar sind. Man benutzt deshalb Ionisationskammern ausschließlich für die Messung von α-Strahlen, und zwar vor allen Dingen für gasförmige Substanzen (z. B. Radon), wobei man auch im strömenden System (Durchfluß-Ionisationskammer) arbeiten kann.

Erhöht man die Feldstärke bei der in Abb. (6–23) skizzierten Anordnung, so tritt ein neuer Effekt auf: Elektronen werden auf ihrem Weg zur Anode so stark beschleunigt, daß sie durch „Stoßionisation" sekundär weitere Ionenpaare erzeugen. Auf diese Weise entsteht aus einem primär durch die radioaktive Strahlung erzeugten Ionenpaar eine Vielzahl von Ionenpaaren. Dies ist der Arbeitsbereich des Proportionalzählers. Um hohe Feldstärken zu erreichen, verwendet man als Anode einen möglichst dünnen Zähldraht (z. B. Molybändraht oder Wolframdraht mit einem Durchmesser von 20 bis 50 μm). Der durch die Stoßionisation bedingte Multiplikationsfaktor ist von der Spannung bzw. Feldstärke abhängig und bewegt sich zwischen 10^3 und 10^5. Dadurch werden durch die von den α- oder β-Teilchen ausgelösten Ionisationsprozesse jeweils kleine Impulse von einigen mV erzeugt. Da die spezifische Ionisation der α-Teilchen erheblich größer ist, liefern α-Teilchen bei gleicher äußerer Spannung (d. h. bei gleichem Multiplikationsfaktor) erheblich größere Impulse als β-Teilchen. Man kann also im Proportionalzähler ebenfalls α- und β-Strahlen unterscheiden (Messung im α-Plateau — d. h. bei niedriger Spannung — bzw. Messung im β-Plateau — d. h. bei höherer Spannung). Die Impulse sind (bei gegebener Spannung) der Energie der α- bzw. β-Teilchen proportional. Energiebestimmungen sind somit möglich.

Proportionalzähler werden meist als „Durchflußzähler" gebaut (Abb. (6–25)); d. h. während des Betriebes strömt ein „Zählgas" durch den Zähler. Als Zählgas wird im allgemeinen Methan oder ein Gemisch aus Argon und Methan verwendet. Die Probe wird in den Zähler eingeschleust. Von der Art und dem Druck des Zählgases hängt die Betriebsspannung des Proportionalzählers ab. Sie bewegt sich zwischen etwa 2000 und 4000 V. Proportionalzähler eignen sich besonders zur Messung von α-Strahlen oder β-Strahlen. Sehr vorteilhaft ist

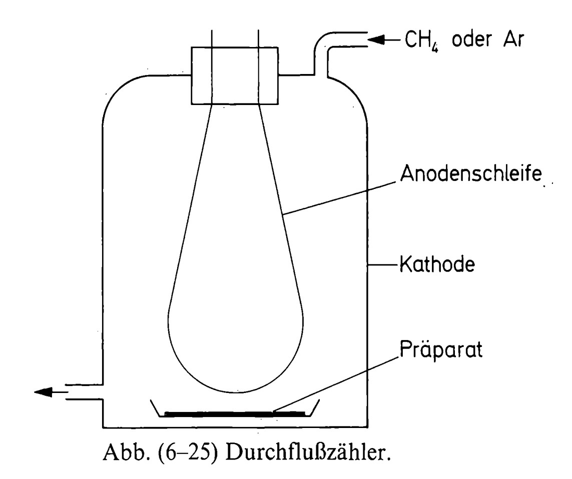


Abb. (6–25) Durchflußzähler.

die hohe geometrische Ausbeute, die in Durchflußzählern erreicht werden kann; Abb. (6–26) zeigt einen 2π-Zähler und einen 4π-Zähler im Schnitt. Der 4π-Zähler besitzt zwei Zähldrähte, so daß die gesamte vom Präparat ausgehende Strahlung gemessen werden kann; im 2π-Zähler wird nur die nach oben austretende Strahlung registriert. Wenn man extrem dünne Präparate verwendet, in denen keine Selbstabsorption stattfindet, kann man in 4π-Zählern eine Zählausbeute von 100% erreichen (Zählausbeute $\eta = 1$) und somit Absolutbestimmungen von Aktivitäten durchführen.

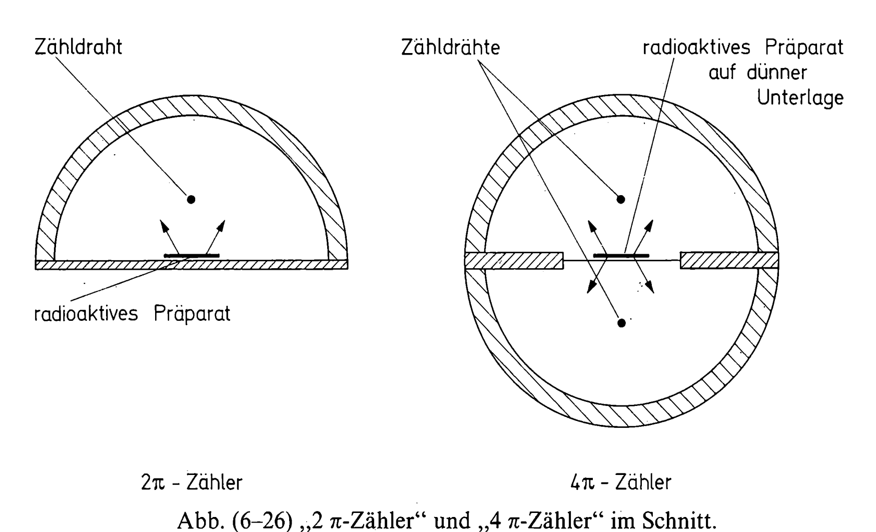


Abb. (6–26) „2 π-Zähler“ und „4 π-Zähler“ im Schnitt.

In Abb. (6–27) ist ein Blockschaltbild für einen Meßplatz mit einem Proportionalzähler als Detektor aufgezeichnet. Der Breitbandver-

stärker dient zur Verstärkung der verhältnismäßig schwachen Impulse, der Diskriminator zur Unterdrückung unerwünschter kleiner Impulse (Störimpulse), zur Unterscheidung der von α- und β-Teilchen ausgelösten Impulse oder zur Sortierung der Impulse nach der Energie der Strahlen.

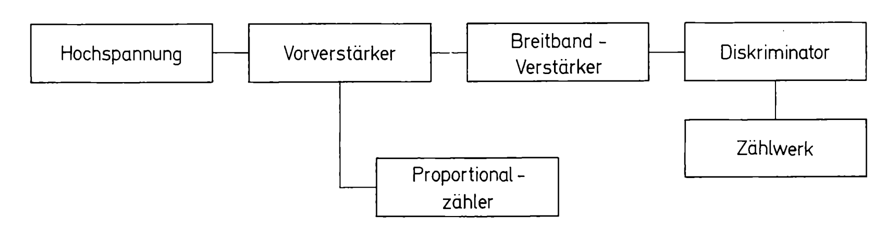


Abb. (6–27) Blockschaltbild für einen Meßplatz mit einem Proportionalzähler als Detektor.

Erhöhen wir die Spannung in der Anordnung nach Abb. (6–23) noch weiter, so erreichen wir zunächst den „Bereich beschränkter Proportionalität" und schließlich den „Auslösebereich". In diesem Bereich breitet sich eine lawinenartige Entladung über das Zählrohr aus, gleichgültig ob durch die radioaktive Strahlung primär nur ein oder viele Ionisationsprozesse ausgelöst werden. Dies ist der Arbeitsbereich des Geiger-Müller-Zählrohrs.

Die lawinenartige Entladung im Geiger-Müller-Zählrohr kann folgendermaßen beschrieben werden: Die Elektronen werden infolge der hohen Feldstärke in der Nähe des Zähldrahtes (Anode, positive Hochspannung) so stark beschleunigt, daß sie durch Stoßionisation eine Vielzahl von Ionisationsvorgängen im Gasraum auslösen. Sie treffen dann mit so hoher Energie auf den Zähldraht, daß sie dort Photonen freimachen:

$$e^- \,(\text{Anode}) \longrightarrow h\nu. \tag{6.25}$$

Die Photonen erzeugen an der Kathode Photoelektronen:

$$h\nu\,(\text{Kathode}) \longrightarrow e^-. \tag{6.26}$$

Diese werden wiederum in Richtung auf die Anode beschleunigt, setzen dort wieder Photonen frei usw. Außerdem bildet sich schlauchartig um die Anode eine Ionenwolke, weil die Ionen sich sehr viel langsamer bewegen als die Elektronen.

Diese Entladungserscheinungen müssen beseitigt („gelöscht") werden, bevor ein neues Teilchen gezählt werden kann. Bei den nicht selbstlöschenden Zählrohren wird deshalb die Spannung am Zählrohr für eine kurze Zeit (z. B. 500 μs) durch eine elektronische Einheit („Totzeiteinheit") abgeschaltet, damit sich das Zählrohr „erholen" kann. Bei den selbstlöschenden Zählrohren setzt man dem „Zählgas" (z. B. 100 Torr Argon) eine kleine Menge eines „Löschgases" zu (z. B. 10 Torr Methanoldampf oder 0,1 Torr Brom); dieses beseitigt („löscht") die kontinuierliche Entladung und die Ionenwolke, indem es die Photonen einfängt und durch Ladungsübertragung zur Neutralisierung der Ionenwolke beiträgt. Als Löschgase sind solche Gase geeignet, die durch Photonen leicht angeregt werden können. Das Geiger-Müller-Zählrohr ist somit nach einem Entladungsvorgang für eine gewisse Zeit unwirksam, es besitzt eine „Totzeit". Nach Ablauf der Totzeit kann das nächste Teilchen gezählt werden, aber erst nach Ablauf der „Erholungszeit" ist das ursprüngliche Potential am Zähldraht wieder erreicht.

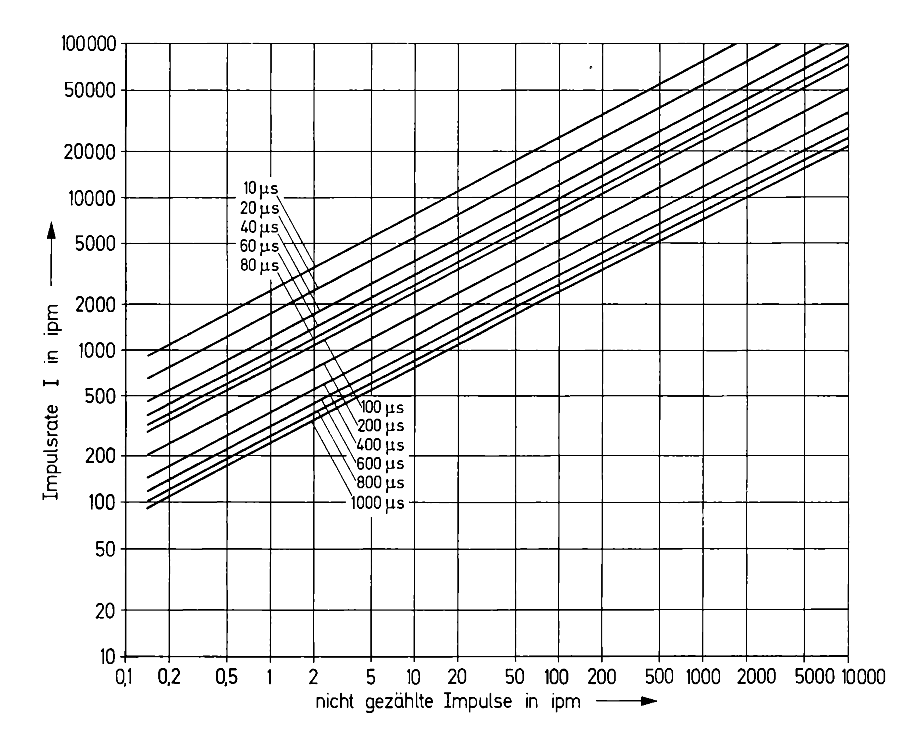


Abb. (6–28) Zahl der nicht gezählten Impulse pro Minute für verschiedene Impulsraten und Totzeiten.

Die Totzeit beträgt bei Alkohol-gelöschten Zählrohren etwa 200 bis 400 μs, bei Halogen-gelöschten Zählrohren etwa 100 μs; sie hängt auch von den äußeren Bedingungen ab. Bei höheren Impulsraten bedingt die Totzeit t merkliche Korrekturen für nicht gezählte Impulse. Bezeichnet man die wahre Impulsrate mit I und die gemessene mit I', so beträgt die Zahl der nicht gezählten Impulse

$$I - I' = \frac{I'^2 t}{1 - It}. \qquad (6.27)$$

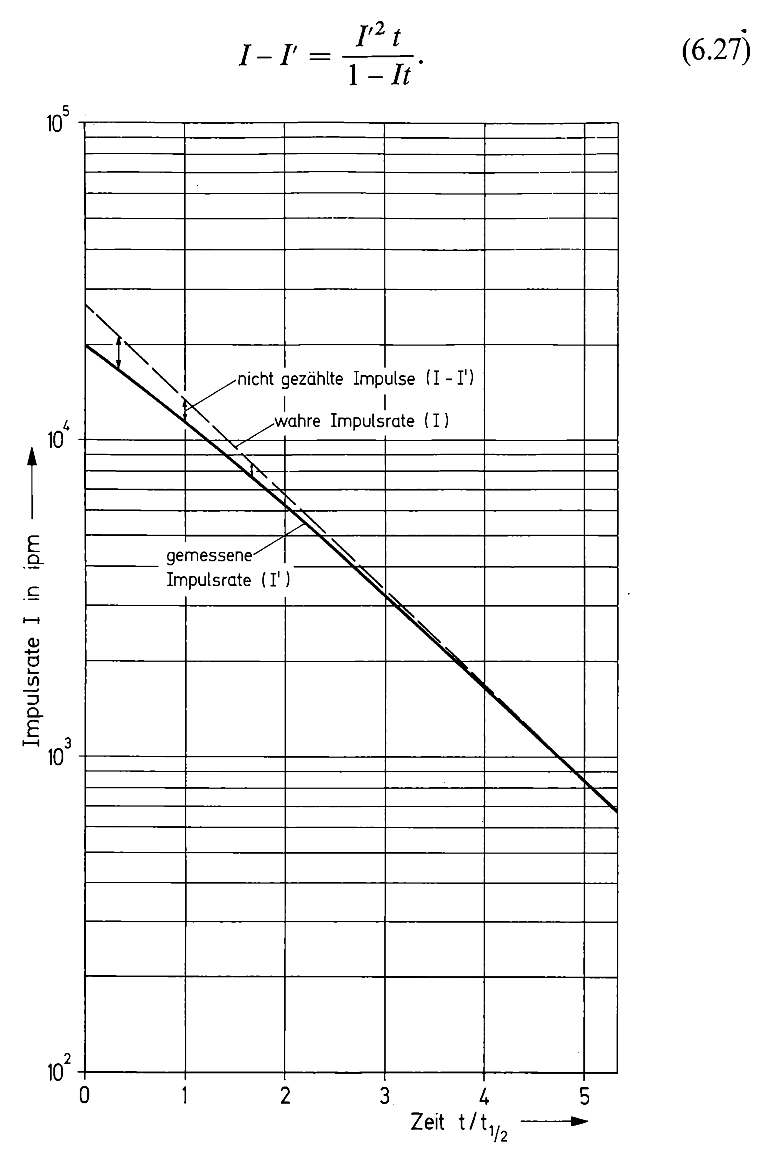


Abb. (6–29) Bestimmung der Totzeit aus der Zerfallskurve eines kurzlebigen Radionuklids.

In Abb. (6–28) ist die Zahl der nicht gezählten Impulse als Funktion der Impulsrate für verschiedene Totzeiten aufgetragen. Man erkennt daraus, daß die Korrekturen bei Impulsraten $I > 10^4$ ipm recht hoch werden, was zu erheblichen Fehlern führen kann, wenn die Totzeit nicht genau bekannt ist.

Die Totzeit von Geiger-Müller-Zählrohren kann auf verschiedene Weise bestimmt werden, z. B. aus dem Aktivitätsabfall eines kurzlebigen Radionuklids (Abb. (6–29)). Die Differenz zwischen dem geradlinigen Verlauf der Zerfallskurve und den gemessenen Werten ist gleich der Zahl der nicht gezählten Impulse. Daraus ergibt sich nach Gl. (6.27) die Totzeit. Eine andere Methode zur Totzeitbestimmung ist die Zweiquellenmethode. Man mißt unter den gleichen Bedingungen zunächst die Impulsrate I_1 eines Präparates 1, dann die Impulsrate I_2 des Präparates 2 und schließlich gleichzeitig die Impulsrate der beiden Präparate $I_{1,2}$. Aus diesen Messungen läßt sich die Totzeit t mit Hilfe der Gleichung

$$\frac{I_1}{1 - I_1 t} + \frac{I_2}{1 - I_2 t} = \frac{I_{1,2}}{1 - I_{1,2} t} \qquad (6.28)$$

berechnen.

Proportionalzähler und Szintillationszähler besitzen im Gegensatz zu Geiger-Müller-Zählrohren nur sehr kleine Totzeiten (etwa 10 μs bzw. 0,01 bis 1 μs); man kann deshalb mit diesen Detektoren viel höhere Impulsraten zählen.

Wie bereits erwähnt, ist die Entladung im Geiger-Müller-Zählrohr unabhängig von der Zahl der primär durch die Strahlung hervorgerufenen Ionisationsvorgänge. Man kann deshalb α-, β- und γ-Strahlen nicht voneinander unterscheiden und auch keine Energiebestimmungen durchführen. Dafür liefern Geiger-Müller-Zählrohre verhältnismäßig starke Impulse (einige Volt), die ohne Verstärkung einem Registriergerät (z. B. einer Zähleinheit) zugeleitet werden können.

Geiger-Müller-Zählrohre gibt es in verschiedenen Ausführungsformen: als Endfensterzählrohr zur Messung von festen Präparaten, als Tauchzählrohr, Flüssigkeitszählrohr oder Gaszählrohr (Abb. (6–30)). Die Endfensterzählrohre sind mit einem dünnen Fenster versehen (im allgemeinen Glimmer, etwa 1,5 bis 3 mg/cm^2). Bei hinreichend dünnem Fenster können α-Strahlen noch gemessen werden, aber mit kleiner und schlecht reproduzierbarer Zählausbeute. Das Gleiche gilt für schwache β-Strahler (z. B. C–14). Am besten eignen

sich Geiger-Müller-Zählrohre für die Messung energiereicher β-Strahlung ($E_{max} \geqslant 1$ MeV). γ-Strahlen werden nur mit kleiner innerer Zähl-

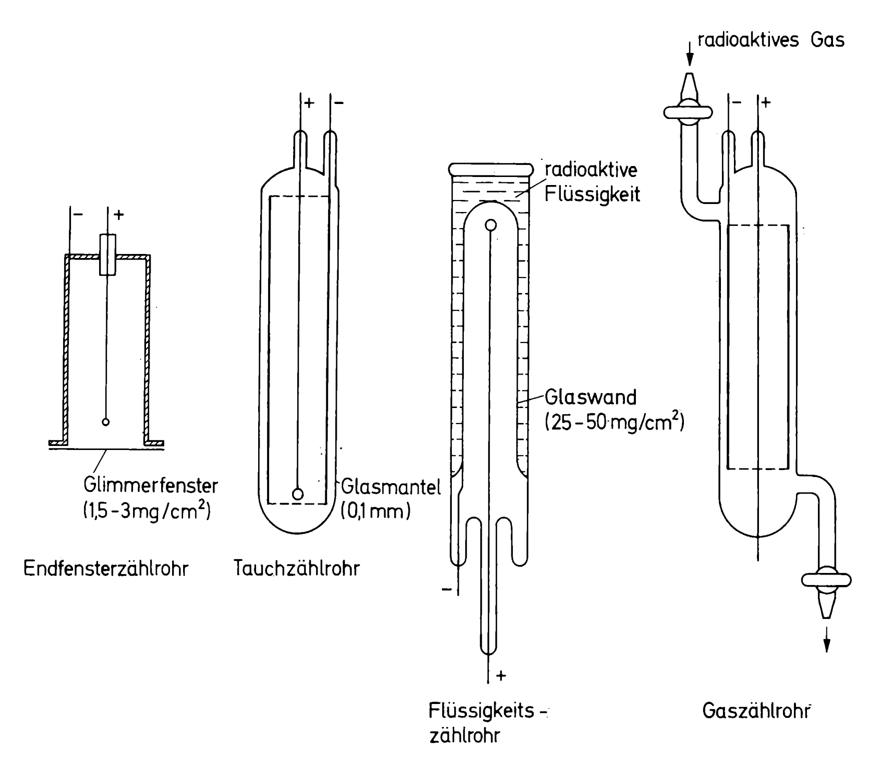


Abb. (6–30) Ausführungsformen von Geiger-Müller-Zählrohren.

ausbeute registriert, weil nur etwa 1% der γ-Quanten, die das Zählrohr passieren, einen Ionisationsvorgang auslösen.

6.5.2. Szintillationszähler und Kristallzähler

Die wesentlichen Bestandteile eines Szintillationszählers sind (Abb. (6–31)): der Kristall, die Photokathode und der Sekundärelektronenvervielfacher (SEV, angelsächsisch „multiplier"). Im Kristall wird die Strahlung absorbiert und löst durch Anregungsprozesse Lichtquanten aus. Diese treffen auf die Photokathode und erzeugen dort Elektronen, die im SEV zu Impulsen von einigen mV verstärkt werden. Szintillationszähler sind besonders vorteilhaft zur Messung von γ-Strahlen; um einen möglichst großen Anteil der γ-Strahlung zu absorbieren, verwendet man dickere Kristalle höherer Dichte, vorzugsweise Natrium-

jodid-Kristalle, die durch Zusatz kleiner Mengen Thallium aktiviert sind. Man erzielt dabei (je nach der Dicke der Kristalle) eine innere Zählausbeute von 15 bis 30% für γ-Strahlen; d. h. die innere Zählausbeute eines Szintillationszählers für γ-Strahlung ist sehr viel höher als die eines Geiger-Müller-Zählrohres. Besondere Vorteile für die Messung der γ-Strahlung in flüssigen Proben bieten Bohrlochkristalle, bei denen man die Probe in den Kristall einführen kann.

Die Szintillationstechnik eignet sich sehr gut für die Messung energiearmer β-Strahlung (z. B. des T oder C–14). Man löst die Probe in einem geeigneten Lösungsmittel, das einen Szintillator enthält, und setzt diese Mischung an Stelle eines festen Kristalls in einen Szintillationszähler ein (Messung mit flüssigen Szintillatoren). Der Szintillator wird durch die Strahlung angeregt und liefert Lichtquanten, die wiederum auf eine Photokathode treffen.

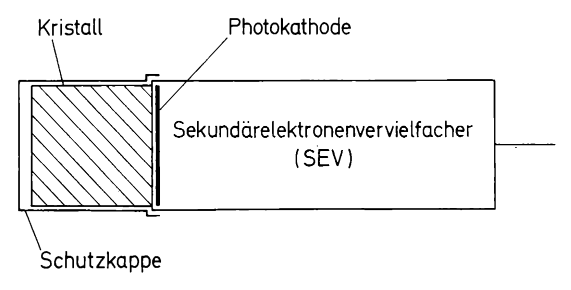


Abb. (6–31) Szintillationszähler (schematisch).

In Tab. 6.5. sind einige Eigenschaften von festen Kristallen und flüssigen Szintillatoren aufgeführt.

Die Photokathode befindet sich am oberen Ende des Sekundärelektronenvervielfachers. Sie muß einen guten Lichtkontakt zum Kristall bzw. zur Szintillatorlösung haben, den man z. B. durch Siliconöl erreichen kann. Die Empfindlichkeit der Photokathode muß auf die Wellenlänge des Szintillators abgestimmt sein. Bei flüssigen Szintillatoren kann man gegebenenfalls durch Zusätze die Wellenlänge der ausgesandten Lichtquanten zu höheren Werten verschieben. Die in der Photokathode durch die auftreffenden Lichtquanten erzeugten Elektronen werden im SEV in mehreren Stufen verstärkt (Verstärkungsfaktor 10^5 bis 10^8), so daß ein meßbarer Impuls entsteht. Dieser ist der Zahl der primär erzeugten Lichtquanten und damit der Energie der Strahlung proportional. Mit einem Szintillationszähler können somit Energiebestimmungen durchgeführt werden, z. B. in einem γ-Spektrometer (vgl. Abschn. 6.4.3.). Das Blockschaltbild eines einfachen

Tabelle 6.5.
Eigenschaften von festen und flüssigen Szintillatoren

	Szintillator	Dichte	λ_{max} in Å	Relative Impulshöhe	Halbwertzeit des anger. Zustands in μs	geeignet für
Anorg. Kristalle	NaJ(Tl)-Einkristall	3,67	4100	210	0,175	γ-Strahlung
	CsJ(Tl)-Einkristall	4,51	5000	55	0,770	γ-Strahlung
	ZnS(Ag)	4,09	4500	100	7	α-Strahlung
Org. Kristalle	Anthracen	1,25	4400	100	0,022	β-Strahlung
	Transstilben	1,16	4100	60	0,004	
	p-Terphenyl	1,23	4000	40	0,004	
Org. Lösungen	5 g p-Terphenyl pro l Toluol	—	3550	35	0,0015	schwache β-Strahlung
	3 g 2,5-Diphenyloxazol pro l Toluol	—	3820	40	0,0021	

Meßplatzes mit einem Szintillationszähler als Detektor ist ähnlich wie bei Verwendung eines Proportionalzählers. Bei einem Einkanal- oder Mehrkanal-Spektrometer sind zusätzlich Antikoinzidenzschaltungen erforderlich, um die Impulse nach der Energie sortieren zu können. Diese Schaltungen werden hier nicht näher besprochen.

In einem Kristallzähler ist der Halbleiter-Einkristall der wesentliche Bestandteil. Er ändert seine elektrischen Eigenschaften — insbesondere seine Leitfähigkeit — unter dem Einfluß ionisierender Strahlung. Der Impuls ist proportional der Energie der auftreffenden Teilchen bzw. Quanten, sofern diese vollständig absorbiert werden. Als Kristalle verwendet man z. B. Silicium- oder Germaniumkristalle, die gegebenenfalls durch Zusätze die gewünschten Halbleitereigenschaften erhalten. Für die Messung von α-Strahlung (α-Spektrometrie) genügen dünne Kristalle, für die Messung von γ-Strahlung benötigt man dagegen dickere Kristalle, wenn man eine gute Absorption und damit eine befriedigende Zählausbeute erzielen will.

6.5.3. Vergleichs- und Absolutmessungen

Die von einem Detektor registrierte Impulsrate I' steigt mit der Aktivität A des Radionuklids an (vgl. Abschn. 5.5.):

$$I' = \eta A + u. \tag{6.29}$$

Zerlegt man die Gesamtzählausbeute η in die einzelnen Faktoren, so erhält man folgende Gleichung:

$$I' = A\, H\, \eta_D (1 - a)\, g\, (1 - s)(1 + r)(1 - t) + u. \tag{6.30}$$

Darin bedeuten H die Häufigkeit des Zerfallsprozesses, die aus dem Zerfallsschema entnommen werden kann, η_D die innere Zählausbeute des Detektors, a die Absorption der Strahlung im Fenster des Detektors (Zählrohres), g den Geometriefaktor, s die Selbstabsorption der Strahlung im Präparat, r die Rückstreuung der Strahlung durch das Präparat, die Unterlage und die Umgebung, t die Totzeitkorrektur und u den Untergrund.

Die innere Zählausbeute η_D ist gleich der Zahl der Impulse, die der Detektor pro Teilchen oder Quant liefert, das in den Detektor eintritt. Für α-Strahlung und β-Strahlung ist η_D in allen Ionisationsdetektoren annähernd 1, für γ-Strahlung aber nur von der Größenordnung 0,01.

In Szintillationszählern beträgt η_D für γ-Strahlung etwa 0,15 bis 0,30 (vgl. Abschn. 6.5.2.).

Der Geometriefaktor g hängt von der geometrischen Anordnung des Präparats zum Detektor ab (Abb. (6–32)). Bei einem Geiger-

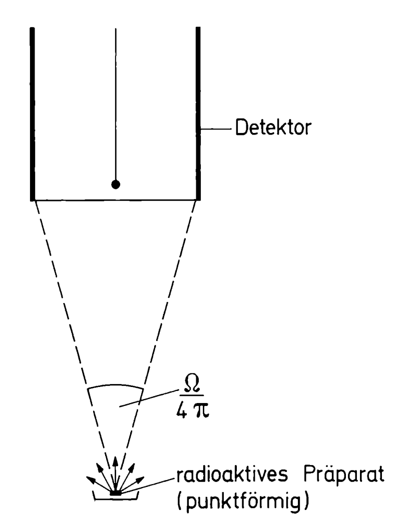


Abb. (6–32) Einfluß des Geometriefaktors g.

Müller-Zähler und einem Szintillationszähler mit normalem Kristall liegt g im allgemeinen in der Nähe von 0,1. In einem 2π-Durchflußzähler beträgt $g \approx 0{,}5$, in einem 4π-Durchflußzähler ist $g = 1$. In einem Bohrlochkristall wird ebenfalls $g \approx 1$ erreicht.

Die Selbstabsorption s hängt sehr stark von der Art der Strahlung ab. Für γ-Strahlung kann man in fast allen praktischen Fällen $s = 0$ setzen. Bei β-Strahlung hoher Energie macht sich die Selbstabsorption wenig bemerkbar, so lange die Präparate dünn sind. β-Strahlung niedriger Energie und α-Strahlung werden dagegen auch in dünnen Präparaten merklich absorbiert. In Abb. (6–33) ist die Selbstabsorption s als Funktion der Schichtdicke des Präparats aufgezeichnet. Man kann eine Kurve für $1 - s$ aufnehmen, indem man jeweils die gleiche Menge eines Radionuklids mit steigenden Mengen inaktiver Substanz (als „Träger“) versetzt und dann durch Fällung Präparate mit verschiedener Schichtdicke herstellt, in denen jeweils die gleiche Aktivität homogen verteilt ist. Man unterscheidet als Grenzfälle eine „unendlich dünne“ Schicht ($s = 0$) und eine „unendlich dicke“ Schicht; im letzteren Falle wird die Strahlung aus dem unteren Teil des Präparats quantitativ absorbiert (Abb. (6–34)).

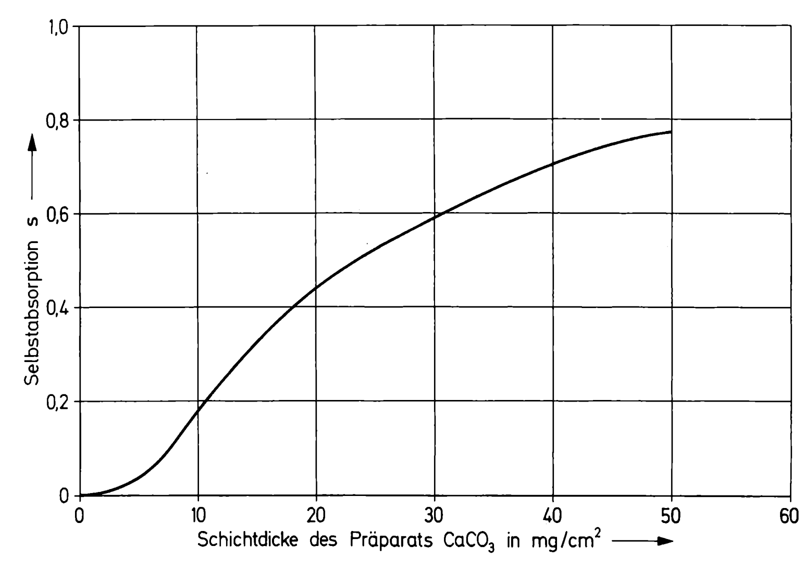


Abb. (6–33) Selbstabsorption s als Funktion der Schichtdicke des Präparats für Ca–45 in $CaCO_3$.

Der Einfluß der Rückstreuung ist aus Abb. (6–13) ersichtlich. Die Rückstreuung r kann bei energiereicher β-Strahlung und Unterlagen mit hoher Ordnungszahl beträchtliche Werte annehmen.

Die Totzeitkorrektur t ist in Abb. (6–28) aufgetragen. Sie spielt bei Geiger-Müller-Zählrohren eine Rolle, bei anderen Detektoren nur im Falle sehr hoher Impulsraten. Der Untergrund u wird getrennt bestimmt.

Bei Vergleichsmessungen mit derselben Meßanordnung sind η_D, g und r konstant. Änderungen dieser Größen können durch Überprüfung der Impulsrate eines für diese Zwecke hergestellten Vergleichspräparates festgestellt werden. Mit Hilfe eines solchen Vergleichspräparates ist auch die Umrechnung der Impulsraten möglich, wenn sich der Geometriefaktor g geändert hat. Die Totzeitkorrektur t kann für jede Messung aus einem Diagramm (Abb. (6–28)) entnom-

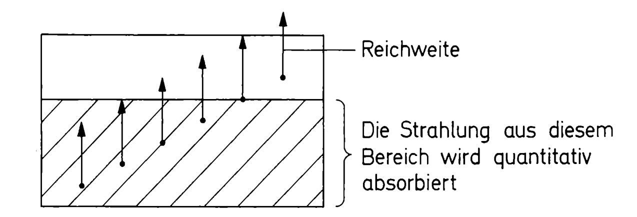


Abb. (6–34) Absorption der Strahlung in einem „unendlich dicken“ Präparat.

men werden. Wichtig bei Vergleichsmessungen von α- oder β-Strahlern ist jedoch die Berücksichtigung der Selbstabsorption s. Verschiedene Selbstabsorption in den Präparaten kann zu erheblichen Fehlern führen. Man strebt deshalb bei festen Präparaten im allgemeinen den Grenzfall der „unendlich dünnen" Schicht an.

Absolutmessungen sind möglich, wenn die in Gl. (6.30) enthaltenen Faktoren genau bekannt sind. Am einfachsten sind die Verhältnisse bei der Messung der α- oder β-Strahlung eines „unendlich dünnen" Präparates in einem Proportionalzähler mit 4π-Geometrie (Abb. (6–26)); dann nehmen alle Faktoren (mit Ausnahme des Untergrundes u) den Wert 1 an. In allen anderen Fällen müssen diese Faktoren im einzelnen ermittelt werden, was im allgemeinen mit einem verhältnismäßig großen Fehler behaftet ist. Eine andere Möglichkeit ist die Verwendung eines geeichten Standardpräparates möglichst gleicher Energie. Wenn man dafür sorgt, daß Selbstabsorption und Rückstreuung vernachlässigbar klein oder aber konstant sind, kann man für eine gegebene Meßanordnung den Wert der in Gl. (6.30) enthaltenen Faktoren bestimmen und Absolutmessungen ausführen.

6.5.4. Auswahl von Meßanordnungen

In Tab. 6.6. sind geeignete Meßanordnungen für verschiedene Strahlungsarten zusammengestellt; diese ergeben sich aus der Diskussion in den vorausgehenden Abschnitten. Die Messung von anderen Strahlungsarten wie Protonen, Deuteronen oder Neutronen wurde bisher nicht näher besprochen. Für Protonen und Deuteronen gelten ähnliche Überlegungen wie für die Messung von α-Teilchen. Sie bewirken ebenfalls eine verhältnismäßig hohe spezifische Ionisation, haben aber bei gleicher Energie eine größere Reichweite. Die Messung von Neutronen muß auf indirektem Wege erfolgen, weil die Neutronen nicht geladen sind. Man macht sich dabei vor allen Dingen die Kernreaktion mit ^{10}B zunutze

$$^{10}_{5}\mathrm{B} + {}^{1}_{0}\mathrm{n} \longrightarrow {}^{7}_{3}\mathrm{Li} + {}^{4}_{2}\mathrm{He}, \qquad (6.31)$$

wobei α-Teilchen frei werden. Die Reaktion verläuft mit sehr guter Ausbeute (Wirkungsquerschnitt 3837 barn). Bor wird entweder als Wandbelag oder als gasförmiges BF_3 in einen Proportionalzähler oder eine Ionisationskammer eingebracht; die nach Gl. (6.31) gebildeten α-Teilchen werden gemessen. Bei energiereichen Neutronen

Tabelle 6.6.
Geeignete Meßanordnungen für verschiedene Strahlungsarten

Art der Strahlung	Ionisationskammer	Proportionalzähler	Geiger-Müller-Zähler	Szintillationszähler	Kristallzähler (Halbleiter)
α-Strahlung	günstig	sehr günstig (Methandurchflußzähler)	ungünstig	geeignet (ZnS) günstig (flüss. Szintillatoren)	günstig
Energiereiche β-Strahlung (> 1 MeV)	ungeeignet	geeignet	sehr günstig	günstig (organ. Kristalle)	ungünstig
Energiearme β-Strahlung (< 0,5 MeV)	ungeeignet	günstig	ungünstig	sehr günstig (flüssige Szintillatoren)	ungünstig
Energiereiche γ-Strahlung (> 0,1 MeV)	ungeeignet	ungeeignet	ungünstig	sehr günstig (NaJ, CsJ)	sehr günstig
Energiearme γ-Strahlung (< 0,1 MeV)	ungeeignet	ungeeignet	geeignet (Röntgenzählrohr)	günstig (NaJ, CsJ)	sehr günstig

kann man auch die Rückstoßprotonen messen, die beim Auftreffen der Neutronen auf wasserstoffhaltige Substanzen entstehen.

Die Strahlung gasförmiger Präparate wird man in einer Ionisationskammer (nur α-Strahlung), einem Proportionalzähler oder einem Gaszählrohr messen; man kann die gasförmige Probe entweder in diese Detektoren einfüllen oder im Strömungsverfahren durch eine Ionisationskammer bzw. einen Durchflußproportionalzähler leiten. γ-Strahler können auch in einem abgeschlossenen Rohr mit einem Szintillationszähler gemessen werden (z. B. in einem Bohrlochkristall).

Flüssige Präparate (Lösungen) werden zweckmäßigerweise mit flüssigen Szintillatoren gemessen, sofern es sich um α-Strahlung oder β-Strahlung niedriger Energie handelt. β-Strahlung höherer Energie und γ-Strahlung können in einem Geiger-Müller-Flüssigkeitszählrohr gemessen werden (vgl. Abb. (6–30)). Die Messung von γ-Strahlen in flüssigen Proben geschieht jedoch wegen der höheren Zählausbeute vorteilhafter mit einem Szintillationszähler, vorzugsweise in einem Bohrlochkristall.

Feste Präparate schließlich werden entweder mit einem Geiger-Müller-Endfenster-Zählrohr gemessen, wenn es sich um β-Strahlung höherer Energie handelt, oder in einem Proportionalzähler (Methandurchflußzähler), sofern es sich um α- oder β-Strahlung handelt. Bei allen Messungen der α- und der β-Strahlung in festen Präparaten muß der Selbstabsorption besondere Beachtung geschenkt werden. Bei der Messung der γ-Strahlung in festen Präparaten mit einem Szintillationszähler treten im allgemeinen keine besonderen Schwierigkeiten auf.

In vielen Fällen ist es zweckmäßig, sofort im Anschluß an eine Trennoperation zu messen. So kann die Aktivitätsmessung in einem Proportionalzähler oder in einer Ionisationskammer direkt an eine gaschromatographische Trennung angeschlossen werden. Wichtig dabei ist der Zusatz eines geeigneten Zählgases. Besonders einfach gestaltet sich die radiogaschromatographische Messung mit einem Durchfluß-Proportionalzähler, wenn Methan als Trägergas für die gaschromatographische Trennung und gleichzeitig als Zählgas verwendet wird. Nach einer Trennung von Substanzen durch Papierchromatographie oder Dünnschichtchromatographie kann die Strahlung direkt auf dem Papier oder auf der Dünnschicht gemessen werden, am einfachsten in der Weise, daß das Papier oder die Dünnschicht direkt an einem Zähler (z. B. einem Proportionalzähler) vorbei oder durch einen solchen Zähler hindurch geführt wird. In Abb. (6–35) ist eine solche Meßanordnung schematisch dargestellt; sie eignet sich auch zur quan-

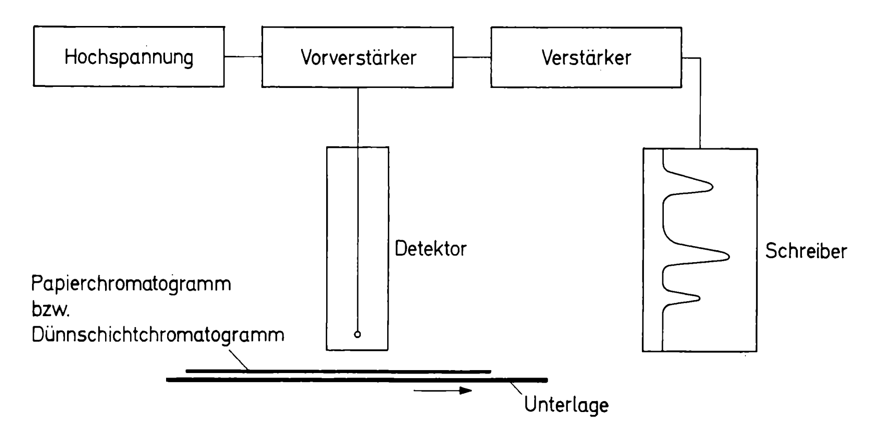


Abb. (6–35) Radiopapier- bzw. Radiodünnschicht-Chromatographie.

titativen Bestimmung von β-Strahlern geringer Energie (z. B. T, C–14). Die Verteilung der Aktivität auf dem Papierchromatogramm oder in der Dünnschicht als Funktion der Laufstrecke kann mit einem Schreiber registriert werden.

6.5.5. Statistische Zählgenauigkeit

Für den radioaktiven Zerfall gelten die Gesetze der Statistik. Von einem einzelnen Atom kann man nicht voraussagen, wann es zerfällt. Jede gemessene Impulsrate ist mit einem statistischen Fehler behaftet, der um so kleiner ist, je mehr Impulse man zählt. Mißt man bei hinreichend langlebigen Radionukliden (Halbwertzeit $\gg$ Meßzeit) den Wert x für die Impulsrate mehrmals hintereinander, so findet man eine Häufigkeitsverteilung um einen Mittelwert $\bar{x}$, der gegeben ist durch die Beziehung

$$\bar{x} = \frac{x_1 + x_2 + x_3 + \ldots x_n}{n} = \frac{1}{n} \sum x_i. \qquad (6.32)$$

Die Breite der Verteilung wird durch die Standardabweichung σ charakterisiert, die folgendermaßen definiert ist:

$$\sigma^2 = \frac{\sum (x - \bar{x})^2}{n - 1}. \qquad (6.33)$$

Die Größe σ^2 wird auch als Varianz bezeichnet. Ist die Zahl der Messungen hinreichend groß ($n \gg 1$), so gilt

$$\sigma^2 = \frac{\sum (x - \bar{x})^2}{n} = \overline{x^2} - \bar{x}^2. \qquad (6.34)$$

Für $n \to \infty$ geht die Verteilung in eine Wahrscheinlichkeitsverteilung über, die nach POISSON gegeben ist durch

$$W(x) = \frac{(\bar{x})^x}{x!} e^{-\bar{x}} \text{ (Poisson-Verteilung).} \qquad (6.35)$$

Diese Verteilung ist in Abb. (6–36) für den Wert $\bar{x} = 5$ aufgezeichnet.

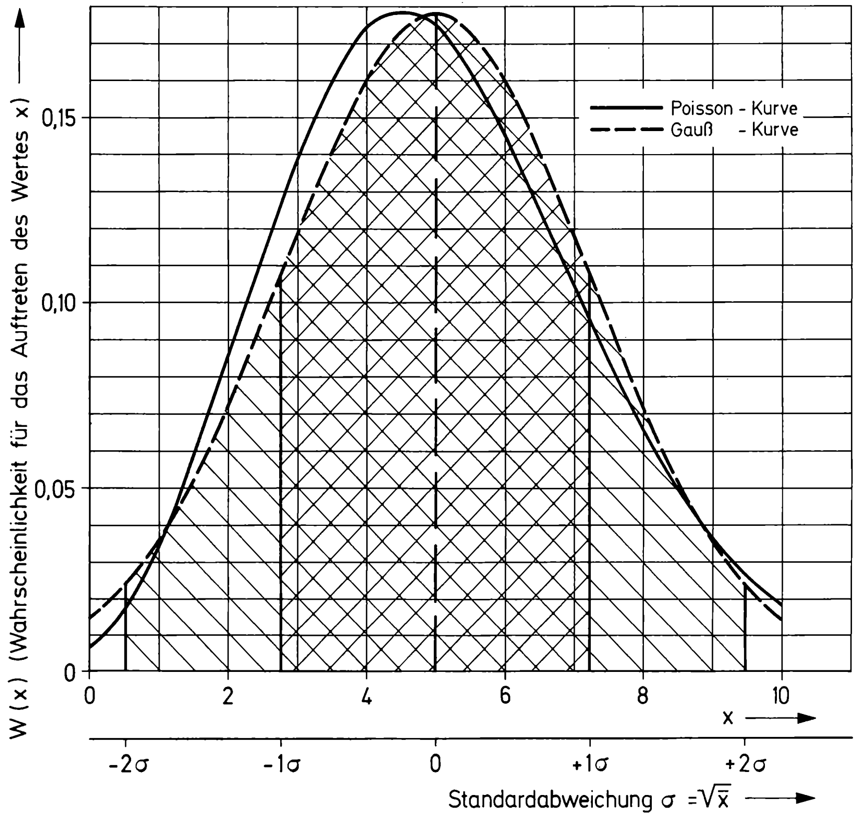


Abb. (6–36) Poisson- und Gauß-Verteilung für $\bar{x} = 5$.

Bei großen Werten von x ($x \gg 1$) fällt die unsymmetrische Poisson-

Verteilung praktisch zusammen mit der symmetrischen Gauß-Verteilung

$$W(x) = \frac{1}{\sigma\sqrt{2\pi}} e^{-\frac{(x-\bar{x})^2}{2\sigma^2}} \quad \text{(Gauß-Verteilung).} \qquad (6.36)$$

Nach der Gauß-Verteilung besteht eine Wahrscheinlichkeit von 68,3% dafür, daß das Ergebnis einer Messung innerhalb der Standardabweichung σ liegt ($|x-\bar{x}| \leqslant \sigma$). Fordert man eine höhere Sicherheit, so muß man eine größere Variationsbreite zulassen: So liegt das Ergebnis mit einer Wahrscheinlichkeit von 95,5% innerhalb von 2σ ($|x-\bar{x}| \leqslant 2\sigma$) und mit einer Wahrscheinlichkeit von 99,9% innerhalb von 3σ ($|x-\bar{x}| \leqslant 3\sigma$).

Aus den Gleichungen (6.34) und (6.35) folgt für die Standardabweichung

$$\sigma = \pm\sqrt{\bar{x}}. \qquad (6.37)$$

Werden bei einer Einzelmessung x Impulse gezählt, so gilt näherungsweise ($x \approx \bar{x}$)

$$\sigma \approx \pm\sqrt{x}.$$

So beträgt die Standardabweichung etwa 1% vom Meßergebnis, wenn 10^4 Impulse gezählt werden. Diese Standardabweichung sucht man nach Möglichkeit zu erreichen oder zu unterschreiten.

6.6. Autoradiographie

Ein besonderer Vorteil der radioaktiven Strahlung ist, daß sie eine sehr genaue Lokalisierung der betreffenden Radionuklide gestattet. Das gilt besonders für α-Strahlen und β-Strahlen. Zur Lokalisierung kann man einen photographischen Film oder eine photographische Platte verwenden, die durch ihre Schwärzung den Ort anzeigen, an dem sich das Radionuklid befindet (Autoradiographie).

Die Anfertigung einer Autoradiographie erfordert eine glatte Oberfläche des Präparates. Es kann sich dabei um eine Metalloberfläche, die angeschliffene Oberfläche eines Minerals, ein Papierchromatogramm, einen dünnen Gesteinsschliff oder einen Gewebeschnitt handeln. In Abb. (6–37) ist die Autoradiographie einer Eisenoberfläche

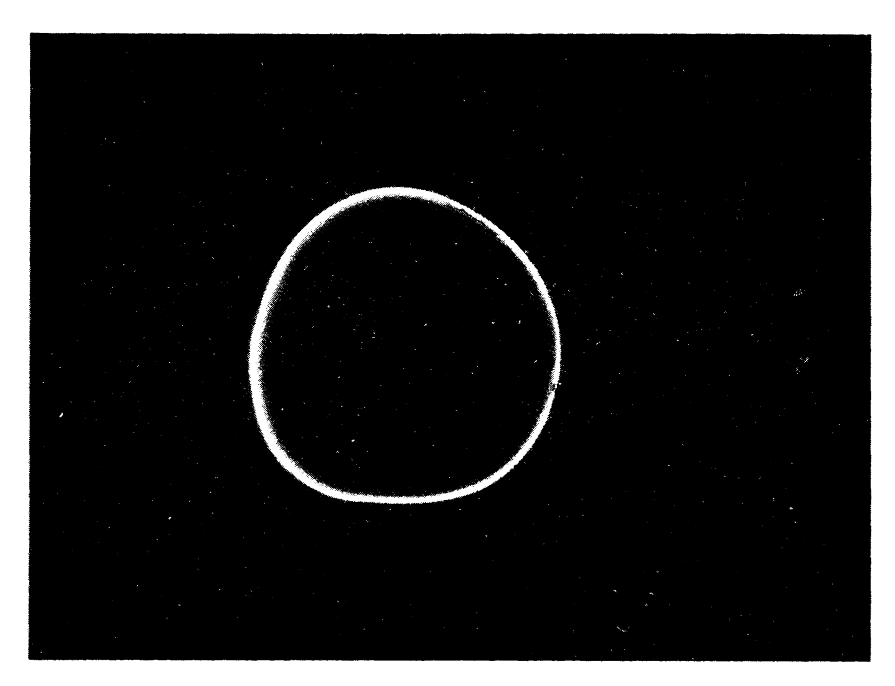


Abb. (6–37) Autoradiographie einer Eisenoberfläche, auf der sich infolge von Korrosion kleine Mengen Eisenhydroxid abgeschieden haben, die mit anderen Methoden nicht erkennbar sind. Nach K. H. LIESER, O. KALVENES u. S. COMPOSTELLA: Corrosion Science **4** (1964) 51.

wiedergegeben, auf der sich infolge Korrosion in einem deutlich erkennbaren Bereich eine mit dem Auge nicht wahrnehmbare Menge von Eisenhydroxid abgeschieden hat. Zur Lokalisierung von radioaktiven Stoffen in Gesteinsschliffen ist die Autoradiographie sehr gut geeignet. Besonders häufig wird die Methode in der Biologie und Medizin zur Untersuchung von Gewebeschnitten verwendet. Die Aufnahme von Radionukliden in verschiedenen Gewebeteilen kann auf diese Weise sehr genau untersucht werden und Aufschluß über die Ablagerung von Radionukliden oder die Funktionstüchtigkeit eines Organs geben.

Die mit einer Autoradiographie erreichbare Auflösung hängt von der Dicke des Präparates ab, in dem sich das Radionuklid befindet, und von dem Abstand zwischen Präparat und photographischer Schicht. Das wird aus Abb. (6–38) deutlich. Von großer Bedeutung ist auch die Korngröße und die Dicke der photographischen Schicht. Letztere sollte nicht mehr als $10 \mu m$ betragen. Feinkörnigere photographische Schichten ergeben zwar eine bessere Auflösung, erfordern andererseits aber auch längere Belichtungszeit. Durch Rückstreuung

der radioaktiven Strahlung auf der Unterlage wird das Auflösungsvermögen verschlechtert.

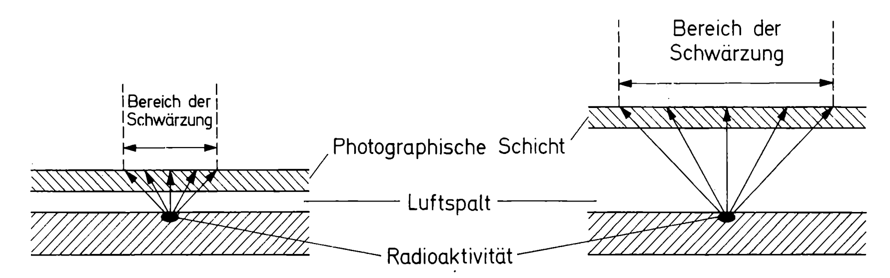


Abb. (6–38) Einfluß des Abstandes zwischen Präparat und photographischer Schicht bei der Autoradiographie.

Bei der Kontaktmethode wird das Präparat auf den photographischen Film bzw. die photographische Platte aufgelegt und angepreßt. Gegebenenfalls wird eine dünne Folie dazwischengelegt, z. B. bei Gewebeschnitten. Für viele Zwecke genügt feinkörniger Röntgenfilm. Das Auflösungsvermögen (Abstand von zwei Punkten, die noch getrennt erkennbar sind) schwankt bei dieser Methode zwischen 20 und 100 μm. Filme, die nur aus einer Emulsionsschicht und einer Gelatineschicht bestehen, eignen sich ausgezeichnet zur Herstellung von Autoradiographien, weil sich diese Schichten der Oberfläche besonders gut anschmiegen („stripping-film"). Der Film wird dabei in trockenem Zustand von der Glasunterlage abgezogen und mit der nach unten gekehrten Emulsionsschicht auf Wasser gelegt; dann wird das Präparat von unten herangeführt, zusammen mit dem Film aus dem Wasser herausgehoben und getrocknet. Das Auflösungsvermögen beträgt etwa 10 μm. Auch flüssige Emulsionen werden verwendet; sie ergeben ebenfalls ein gutes Auflösungsvermögen. Bei diesen Methoden werden Emulsion und Präparat nach der Belichtung meist nicht voneinander getrennt. Die Emulsion kann nach dem Entwickeln und Fixieren mit oder ohne Präparat auf einen Objektträger aufgelegt und im Mikroskop betrachtet werden.

Die Belichtungszeit hängt ab von der Aktivität, der Energie und dem Verteilungszustand des Radionuklids sowie von der Empfindlichkeit des Films. Bei einer Aktivität von der Größenordnung μCi/cm^2 sind Belichtungszeiten von einigen Stunden üblich. Die günstigste Belichtungszeit muß allerdings für jede praktische Aufgabe gesondert ermittelt werden. Die Empfindlichkeit ist bei der Autoradiographie verhältnismäßig groß. Präparate, die bei einer Oberfläche von einigen cm^2

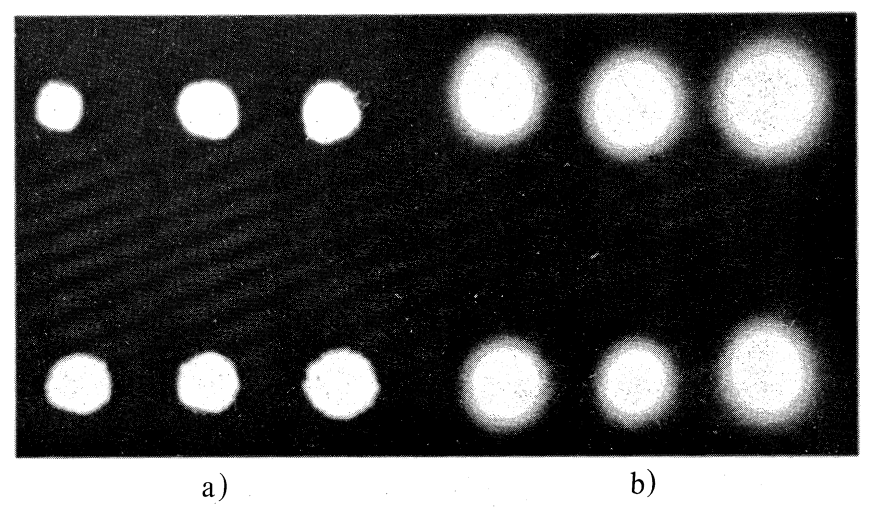


Abb. (6–39) Autoradiographie von zwei β-Strahlern verschiedener Energie
a) S–35; 0,167 MeV
b) P–32; 1,71 MeV

in einem Geiger-Müller-Endfensterzählrohr im Abstand von 1 bis 2 cm eine Impulsrate von der Größenordnung 10 ipm liefern, lassen sich noch durch Autoradiographie nachweisen. Allerdings sind dann oft Belichtungszeiten von mehreren Wochen erforderlich. Mit der Belichtungszeit wächst aber auch der Anteil der Schwärzung an, der durch Umgebungsstrahlung und kosmische Strahlung hervorgerufen wird. Strahlen mit kurzer Reichweite — α-Strahlen und β-Strahlen niedriger Energie — ergeben kontrastreichere Aufnahmen, weil sie nur in ihrer unmittelbaren Nähe eine Schwärzung hervorrufen. Abb. (6–39) zeigt die Autoradiographie von zwei punktförmig verteilten β-Strahlern verschiedener Energie. Der energiereichere β-Strahler gibt sich durch einen größeren Bereich diffuser Schwärzung zu erkennen.

Literatur zu Kapitel 6

1. E. Rutherford, J. Chadwick, C. D. Ellis: Radiations from Radioactive Substances. Cambridge University Press 1930.
2. K. Siegbahn: Alpha-, Beta- and Gamma-Ray Spectroscopy, 2 Bde., North-Holland Publishing Company, Amsterdam 1966.
3. M. Rich, R. Madey: Range-Energy Tables. University of California Radiation Laboratory Report UCRL–2301 (1954).
4. L. C. Northcliffe: Passage of Heavy Ions through Matter. Annu. Rev. nuclear Sci. **13** (1963) 67.

5. W. WHALING: The Energy Loss of Charged Particles in Matter. Handbuch der Physik. Hrsg. S. FLÜGGE. Bd. 34: Korpuskeln und Strahlung in Materie II. Springer-Verlag, Berlin-Göttingen-Heidelberg 1958, S. 193.
6. R. M. STERNHEIMER: Range-Energy Relations for Protons in Be, C, Al, Cu, Pb and Air. Physic. Rev. **115** (1959) 137.
7. D. TAYLOR: The Measurement of Radio Isotopes. Methuen & Co. Ltd., London 1951.
8. G. D. O'KELLEY: Detection and Measurement of Nuclear Radiation. In: Nuclear Science Series NAS-NS 3105. Hrsg. W. W. MEINKE, Subcommittee on Radiochemistry, National Academy of Sciences, National Research Council 1962.
9. G. B. COOK, J. F. DUNCAN: Modern Radiochemical Practice. Clarendon Press, Oxford 1952.
10. R. T. OVERMAN, H. M. CLARK: Radioisotope Techniques. McGraw-Hill Book Comp., New York 1960.
11. E. FÜNFER, H. NEUERT: Zählrohre und Szintillationszähler, 2. Aufl., Verlag G. Braun, Karlsruhe 1959.
12. B. B. ROSSI, H. H. STAUB: Ionization Chambers and Counters. National Nuclear Energy Series, Div. V-Vol. 2. McGraw-Hill Book Comp., New York 1949.
13. D. H. WILKINSON: Ionization Chambers and Counters. Cambridge University Press 1950.
14. S. C. CURRAN, J. D. CRAGGS: Counting Tubes. Academic Press, New York 1949.
15. J. B. BIRKS: Scintillation Counters. McGraw-Hill Book Comp., New York 1953.
16. C. G. BELL, F. N. HAYES: Liquid Scintillation Counting. Pergamon Press, London 1958.
17. R. K. SWANK: Characteristics of Scintillators. Annu Rev. nuclear Sci. **4** (1954) 111.
18. G. L. MILLER, W. M. GIBSON, P. F. DONOVAN: Semiconductor Particle Detectors. Annu. Rev. nuclear Sci. **12** (1962) 189.
19. H. H. STAUB: Detection Methods. In: Experimental Nuclear Physics, Bd. I. Hrsg. E. SEGRÈ. John Wiley and Sons, Inc., New York 1953, S. 1.
20. L. C. L. YUAN, C. S. WU: Methods of Experimental Physics. Bd. 5A: Nuclear Physics. Academic Press, New York 1961.
21. W. FRANZEN, L. W. COCHRAN: Pulse Ionization Chambers and Proportional Counters. In: Nuclear Instruments and Their Uses, Bd. I. Hrsg. A. H. SNELL. John Wiley and Sons, Inc., New York 1962, S. 3.
22. B. J. MOYER: A Survey of Čerenkov Counter Technique, ibid. S. 166.
23. Handbuch der Physik. Hrsg. S. FLÜGGE, E. CREUTZ. Bd. 45: Instrumentelle Hilfsmittel der Kernphysik II. Springer-Verlag, Berlin-Göttingen-Heidelberg 1958.
24. M. BLAU: Photographic Emulsions. In: Methods of Experimental Physics, Bd. 5, Tl. A, Nuclear Physics. Hrsg. L. C. L. YUAN, C. S. WU. Academic Press, New York 1961, S. 208-264.

Übungen zu Kapitel 6

1. Wie groß ist die maximale Reichweite der β^--Strahlung von P–32, Sr–90/Y–90 und Pa–234 m in Aluminium?

2. Für die Halbwertdicke der γ-Strahlung eines Radionuklids in Blei wurde der Wert $d_{1/2} = 6{,}7\,\text{g/cm}^2$ gefunden. Handelt es sich bei dem betreffenden Radionuklid um Co–60 oder Cs–137?

3. Die Maximalenergie der β^--Strahlung des P–32 beträgt 1,71 MeV. Wie groß ist die maximale Anfangsgeschwindigkeit der aus den Kernen austretenden β^--Teilchen?

4. Wie groß ist der Massenzuwachs (bezogen auf die Ruhemasse) von Teilchen, die mit der Hälfte der Lichtgeschwindigkeit von einem radioaktiven Kern ausgesandt werden?

5. In welchem Verhältnis stehen die Energieverluste durch Bremsstrahlung und durch Ionisation, wenn die β^--Strahlung von P–32 auf einen Goldabsorber und auf einen Aluminiumabsorber trifft?

6. Die Halbwertzeit des Ac–225 beträgt 10 d. Dieses Radionuklid sendet α-Strahlen mit einer Energie von 5,80 MeV aus. Wie groß ist die Leistung in Watt pro 100 mg dieses Radionuklids?

7. Nach der Zweiquellenmethode wurden mit einem Geiger-Müller-Zählrohr folgende Impulsraten gemessen: $I_1 = 11\,630$ ipm, $I_2 = 14\,560$ ipm, $I_{1,2} = 23\,196$ ipm. Wie groß ist die Totzeit des Zählrohres?

8. Wie groß ist die Gesamtzählausbeute η bei Messung eines punktförmigen Präparats mit einem Geiger-Müller-Zählrohr von 20 mm Fensterdurchmesser in 5 cm Abstand, wenn die Selbstabsorption, die Rückstreuung sowie die Totzeitkorrektur vernachlässigbar klein sind, 10% der Strahlung im Fenster absorbiert werden und die innere Zählausbeute des Detektors 95% beträgt?

9. Welche Meßanordnungen kommen in Frage:
   a) für die Messung von Tritium in organischen Verbindungen?
   b) für die Messung von $^{14}CO_2$?
   c) für die Messung von Ca–45?
   d) für die Messung von J–131?

10. Wie groß ist die Standardabweichung σ und der wahrscheinliche relative Fehler bei der Messung von 10^2, 10^3, 10^4 und 10^5 Impulsen?

7. Zerfallsprozesse

7.1. Übersicht

Beim radioaktiven Zerfall können vier Gruppen von Zerfallsprozessen unterschieden werden; sie sind schematisch in Tab. 7.1. zusammengestellt.

7.1.1. Emission von Nukleonen

An erster Stelle ist der α-Zerfall zu nennen, der bevorzugt bei schweren Kernen auftritt und z. B. in den Zerfallsreihen des Urans und des Thoriums beobachtet wird. Beim α-Zerfall werden Heliumkerne ausgestoßen: ${}^4_2He$. (Die Heliumkerne werden manchmal auch als Helionen bezeichnet.) Die Massenzahl des Kerns nimmt dabei um 4 Einheiten ab, die Ordnungszahl um zwei Einheiten (1. radioaktiver Verschiebungssatz von SODDY und FAJANS, vgl. Abschn. 5.1.).

Ob ein Atomkern gegen α-Zerfall stabil ist, kann man prüfen, indem man die Energie ΔE der Umwandlung

$$A \longrightarrow B + {}^4_2He + \Delta E \qquad (7.1)$$

aus der Differenz der Nuklidmassen der beiden Nuklide A und B berechnet $\Delta E = (M_A - M_B - M_\alpha) \cdot c^2$. Die Rechnung zeigt, daß alle schwereren Kerne mit Massenzahlen $A > \approx 140$ im Hinblick auf einen α-Zerfall instabil sind. Bei kleinen positiven ΔE-Werten ist aber die Umwandlungsgeschwindigkeit so extrem klein, daß sie nicht beobachtet werden kann (vgl. Abschn. 5.2.). Das bedeutet, daß diese Kerne zwar energetisch instabil, kinetisch aber stabil sind (ähnlich wie ein Gemisch von Sauerstoff und Wasserstoff bei Zimmertemperatur).

Die gleichen Überlegungen kann man auch hinsichtlich der Aussendung von Protonen anstellen. Es erscheint zunächst überraschend, daß Protonenaktivität — d. h. Zerfall unter Aussendung von Proto-

Tabelle 7.1.
Übersicht über die verschiedenen Zerfallsprozesse

Zerfallsart	Symbol	Art der ausgesandten Strahlung		Zerfallsvorgang	Bemerkungen
α-Zerfall	α	Heliumkerne	${}^{4}_{2}He^{2+}$	${}^{A}Z \rightarrow {}^{A-4}(Z-2) + {}^{4}_{2}He^{2+}$	bevorzugt bei Kernen mit Z > 83
β-Zerfall	β^-	Elektronen (Negatronen)	${}^{0}_{-1}e^-$	${}^{1}_{0}n \rightarrow {}^{1}_{1}p + {}^{0}_{-1}e^- + {}^{0}_{0}\bar{\nu}$ ${}^{A}Z \rightarrow {}^{A}(Z+1)$	unterhalb der Linie der β-Stabilität
	β^+	Positronen	${}^{0}_{1}e^+$	${}^{1}_{1}p \rightarrow {}^{1}_{0}n + {}^{0}_{1}e^+ + {}^{0}_{0}\nu$ ${}^{A}Z \rightarrow {}^{A}(Z-1)$	oberhalb der Linie der β-Stabilität
Elektroneneinfang (K-Strahlung)	K	charakteristische Röntgenstrahlung		${}^{1}_{1}p_{(Kern)} + {}^{0}_{-1}e^-_{(Hülle)} \rightarrow$ ${}^{1}_{0}n + {}^{0}_{0}\nu$ ${}^{A}Z \rightarrow {}^{A}(Z-1)$	
γ-Zerfall	γ	Photonen	$(h \cdot \nu)$	Abgabe von Anregungsenergie	etwa 10^{-16} bis 10^{-13}s nach α- oder β-Zerfall
Isomere Umwandlung	I.U.	Photonen	$(h \cdot \nu)$	Verzögerte Abgabe von Anregungsenergie ${}^{Am}Z \rightarrow {}^{A}Z$	bevorzugt unterhalb der magischen Zahlen; angeregter Zustand metastabil
Konversionselektronen	e^-	Elektronen und charakterist. Röntgenstrahlung		Anregungsenergie wird auf ein Elektron der Hülle übertragen	bevorzugt bei niedriger Anregungsenergie (< 0,2 MeV)
Spontanspaltung	Sp	Neutronen	n	${}^{A}Z \rightarrow {}^{A'}Z' + {}^{A-A'-\nu}(Z-Z') + \nu \cdot n$	bevorzugt bei Kernen mit A > 245

nen — im Gegensatz zur α-Aktivität praktisch nicht beobachtet wird. Berechnet man für protonenreiche Nuklide die Energie ΔE der Umwandlung

$$A \longrightarrow B + {}^1_1H + \Delta E, \tag{7.2}$$

so stellt man fest, daß in der Nähe der Linie der β-Stabilität der Protonenzerfall nicht eintreten kann, weil ΔE negativ ist. Dies beruht auf der verhältnismäßig hohen Bindungsenergie des „letzten“ Protons (einige MeV). Im Gegensatz dazu ist die Bindungsenergie eines α-Teilchens im Kern verhältnismäßig klein, weil sich hier die hohe Bindungsenergie der 4 Nukleonen innerhalb des α-Teilchens bemerkbar macht. Weit entfernt von der Linie der β-Stabilität allerdings werden die Nuklide instabil im Hinblick auf Protonenzerfall. In diesem Bereich machen sich die Terme für die Coulombenergie und die Symmetrieenergie in der Weizsäcker-Formel (Gl. (1.2) in Abschn. 1.5.) stark bemerkbar. Bei dem großen Abstand von der Linie der β-Stabilität wird jedoch die Halbwertzeit für den β^+-Zerfall bzw. den Elektroneneinfang (K-Strahlung) so kurz, daß diese Umwandlungen im allgemeinen bei weitem überwiegen.

Etwas günstiger als die Aussendung von einem Proton ist die Aussendung von zwei Protonen oder einem Deuteron, weil dann die Bindungsenergie der beiden Nukleonen (etwa 1 bis 3 MeV) in Erscheinung tritt. Aber auch diese Zerfallsarten können in der Nähe der Linie der β-Stabilität nicht auftreten.

Gelegentlich werden Nukleonen im Anschluß an einen vorausgehenden Zerfallsprozeß emittiert, wenn dieser zu einem angeregten (isomeren) Zustand eines Kerns mit der Ordnungszahl Z (Massenzahl A) führt, der energetisch höher liegt als derjenige für einen Kern mit der Ordnungszahl Z – 1 (Massenzahl A – 1) und ein Proton bzw. einen Kern mit der Ordnungszahl Z (Massenzahl A – 1) und ein Neutron; an Stelle der isomeren Umwandlung in den Grundzustand kann dann ein Protron bzw. ein Neutron emittiert werden. Man spricht in diesem Falle von verzögerten Protonen („delayed protons“) bzw. Neutronen („delayed neutrons“); auch verzögerte α-Emission ist möglich. Verzögerte Protonen treten auf beim β^+-Zerfall von C–9, O–13, Ne–17, Mg–21, Si–25, S–29, Ar–33 u. a., verzögerte Neutronen beim β^--Zerfall von Li–9, C–16, N–17 u. a. Auch bei der Kernspaltung werden verzögerte Neutronen emittiert (vgl. Abschn. 8.8.).

7.1.2. Emission von Elektronen und Positronen; Elektroneneinfang

Die negativ geladenen Elektronen (Negatronen, Elektronen im engeren Sinne) und die positiv geladenen Elektronen (Positronen = Positive) (Elek)tronen) werden in der Kernphysik zur Gruppe der Leptonen („leichte" Elementarteilchen) gerechnet (vgl. Tab. 2.1.). Die Ruhemasse eines Elektrons beträgt $0{,}5486 \cdot 10^{-3}$ ame (atomare Masseneinheiten).

Elektronen e^- treten bei einem β^--Zerfall auf. Sie entstehen im Kern durch Umwandlung eines Neutrons in ein Proton:

$$^1_0\text{n} \rightarrow {}^1_1\text{p} + {}_{-1}^{\ 0}\text{e} + \bar{\nu}. \tag{7.3}$$

Dabei bildet sich außer dem Elektron ein Antineutrino $\bar{\nu}$. Die Massenzahl ändert sich nicht; die Ordnungszahl nimmt um eine Einheit zu (2. radioaktiver Verschiebungssatz). β^--Zerfall wird bei solchen radioaktiven Nukliden beobachtet, die sich in der Nuklidkarte unterhalb der Linie der β-Stabilität befinden, d. h. einen Neutronenüberschuß besitzen. Demzufolge findet man β^--aktive Nuklide in den Zerfallsreihen des Urans und des Thoriums (Tab. 5.1., 5.3. und 5.4.) und den Produkten der Kernspaltung (vgl. Abschn. 8.8.). Auch ein doppelter β-Zerfall — d. h. gleichzeitige Aussendung von zwei Elektronen — findet gelegentlich statt, wie kürzlich festgestellt werden konnte.

Bei einem β^+-Zerfall treten Positronen e^+ auf. Sie entstehen im Kern durch Umwandlung eines Protons in ein Neutron:

$$^1_1\text{p} \longrightarrow {}^1_0\text{n} + {}^0_1\text{e} + \nu. \tag{7.4}$$

Hierbei entsteht außer dem Positron ein Neutrino ν. Die Massenzahl ändert sich nicht; die Ordnungszahl nimmt um eine Einheit ab (3. radioaktiver Verschiebungssatz, SODDY 1953). β^+-Zerfall wird bei solchen radioaktiven Nukliden beobachtet, die sich in der Nuklidkarte oberhalb der Linie der β-Stabilität befinden, d. h. einen Protonenüberschuß (Neutronenunterschuß) besitzen. β^+-aktive Nuklide treten weder in den radioaktiven Zerfallsreihen noch in den Produkten der Kernspaltung auf. Sie können in Beschleunigern durch Bestrahlung mit Protonen, Deuteronen oder energiereichen γ-Quanten erzeugt werden.

Wenn ein instabiler Kern einen Protonenüberschuß besitzt, kann er diesen auch durch Elektroneneinfang (angelsächsisch EC = „elec-

tron capture“) kompensieren (Abb. (7–1)). Dabei wird vorzugsweise

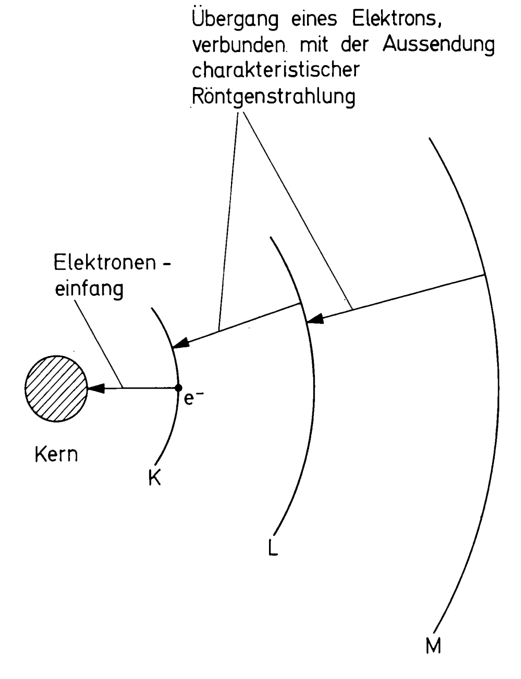


Abb. (7–1) Elektroneneinfang.

ein Elektron aus der K-Schale eingefangen; es findet folgende Reaktion statt:

$$ {}^{1}_{1}\mathrm{p} + {}^{\;0}_{-1}\mathrm{e}\,(\text{Hülle}) \longrightarrow {}^{1}_{0}\mathrm{n} + \nu. \tag{7.5}$$

Das Ergebnis ist somit das gleiche wie bei einem β^+-Zerfall: Die Massenzahl ändert sich nicht; die Ordnungszahl nimmt um eine Einheit ab. Man würde die Umwandlung nicht beobachten, wenn nicht die Lücke in der Elektronenhülle durch andere Elektronen, die sich auf höheren Energieniveaus befinden, aufgefüllt würde. Dabei wird eine charakteristische Röntgenstrahlung ausgesandt, und zwar eine K-Strahlung, wenn der Kern ein Elektron der K-Schale einfängt. Deshalb nennt man die beim Elektroneneinfang auftretende Strahlung K-Strahlung (Symbol K). Der Elektroneneinfang (K-Strahlung) wird ebenfalls oberhalb der Linie der β-Stabilität beobachtet. Er kann an Stelle eines β^+-Zerfalls auftreten.

Die Zerfallsenergie ΔE für den β^--Zerfall ergibt sich aus der Gleichung

$$A \longrightarrow B + e^- + \Delta E. \qquad (7.6)$$

ΔE ist proportional der Differenz der Kernmassen m:

$$\Delta E = (m_A - m_B - m_e)\, c^2. \qquad (7.7)$$

Setzt man die Nuklidmassen

$$M = m + Z m_e \qquad (7.8)$$

ein (vgl. Abschn. 1.6.), so folgt

$$\Delta E = (M_A - Zm_e - M_B + (Z+1)\, m_e - m_e)\, c^2 = (M_A - M_B)\, c^2; \qquad (7.9)$$

d. h. die Masse des Elektrons fällt in der Gleichung heraus, weil sie in der Differenz der Nuklidmassen bereits berücksichtigt ist.

Für den β^+-Zerfall gilt analog

$$A \longrightarrow B + e^+ + \Delta E \qquad (7.10)$$

und für die Energie

$$\begin{aligned} \Delta E &= (m_A - m_B - m_e)\, c^2 \\ &= (M_A - Z m_e - M_B + (Z-1)\, m_e - m_e)\, c^2 \\ &= (M_A - M_B - 2 m_e)\, c^2; \end{aligned} \qquad (7.11)$$

d. h. beim β^+-Zerfall sind zwei Elektronenmassen zu berücksichtigen. Dies bedeutet aber, daß ein β^+-Zerfall nur dann eintreten kann, wenn

$$M_A \geq M_B + 2 m_e \qquad (7.12)$$

ist, d. h. wenn die Nuklidmasse von A um mindestens 2 Elektronenmassen größer ist als die Nuklidmasse von B. Für den Elektroneneinfang gilt die Gleichung

$$A + e^- \longrightarrow B + \Delta E. \qquad (7.13)$$

Die Energie ergibt sich zu

$$
\begin{aligned}
\Delta E &= (m_A + m_e - m_B)\, c^2 \\
&= (M_A - Z m_e + m_e - M_B + (Z-1) m_e)\, c^2 \\
&= (M_A - M_B)\, c^2 ; \qquad (7.14)
\end{aligned}
$$

Elektroneneinfang kann somit immer stattfinden, wenn

$$M_A \geq M_B \qquad (7.15)$$

ist. Er ist also auch bei kleinen Differenzen der Nuklidmassen möglich, wenn ein β^+-Zerfall nicht eintreten kann. Das Verhältnis Elektroneneinfang zu β^+-Zerfall nimmt mit steigender Zerfallsenergie ΔE ab und für eine gegebene Zerfallsenergie mit steigender Ordnungszahl zu.

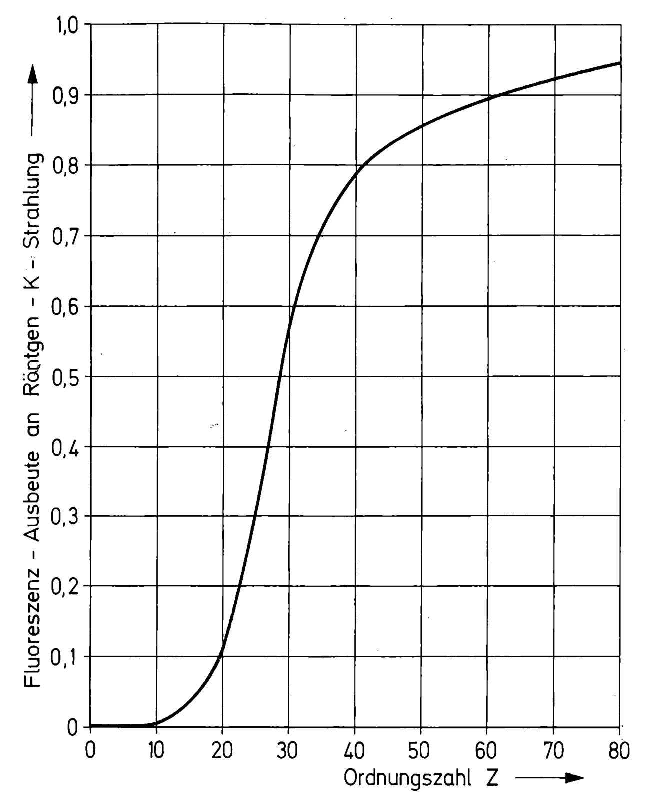


Abb. (7–2) Fluoreszenz-Ausbeute an Röntgen-K-Strahlung als Funktion der Ordnungszahl. Nach C. D. Broyles, D. A. Thomas u. S. K. Haynes: Physic. Rev. **89** (1953) 715.

Die nach dem Elektroneneinfang vorhandene Lücke wird meist durch ein Elektron aus der nächst höheren Schale aufgefüllt. An Stelle der charakteristischen Röntgenstrahlung kann auch durch sog. inneren Photoeffekt ein Elektron ausgesandt werden, dessen kinetische Energie gleich der Energie der charakteristischen Röntgenstrahlung abzüglich der Bindungsenergie des betreffenden Elektrons ist. Diese Elektronen, die durch inneren Photoeffekt entstehen, werden „Auger-Elektronen" genannt. Man unterscheidet die Auger-Ausbeute und die Fluoreszenz-Ausbeute. Als Fluoreszenz-Ausbeute der K-Schale bezeichnet man den Quotienten ω_K = Zahl der nach außen emittierten K-Röntgenquanten, dividiert durch die Zahl der Lücken in der K-Schale, als Auger-Ausbeute der K-Schale die Differenz $1 - \omega_K$; entsprechend werden die Fluoreszenz-Ausbeute und die Auger-Ausbeute der L-Schale definiert. Die Fluoreszenz-Ausbeute steigt mit der Ordnungszahl an (Abb. (7–2)). Die Kenntnis der Fluoreszenz-Ausbeute ist wichtig für die Messung der K-Strahler.

Außerdem wird beim Elektroneneinfang eine elektromagnetische Strahlung sehr geringer Intensität ausgesandt, die als „innere Bremsstrahlung" bezeichnet wird. Die Energie dieser Bremsstrahlung entspricht einem Teil oder im Grenzfall dem Gesamtbetrag der Energie, die normalerweise von einem Neutrino mitgeführt wird. Durch Messung der Maximalenergie der inneren Bremsstrahlung kann man die beim Elektroneneinfang freiwerdende Energie ΔE bestimmen. Die Zahl der Photonen, die pro Elektroneneinfang als innere Bremsstrahlung auftreten, beträgt etwa $7{,}4 \cdot 10^{-4}\,\Delta E^2$ (Energie ΔE in MeV).

7.1.3. Emission von Photonen und Konversionselektronen

Oft verbleibt der Kern nach Aussendung eines α-Teilchens, nach einem β^-- oder β^+-Zerfall oder nach einem Elektroneneinfang in einem angeregten Zustand. Die Anregungsenergie wird dann in Form von einem oder mehreren γ-Quanten mit der Energie $E = h\nu$ abgegeben (Abbn. (7–3) und (7–4)); dabei geht der Kern in einer oder in mehreren Stufen in den Grundzustand über. Die Lebensdauer eines angeregten Zustandes beträgt im allgemeinen nur etwa 10^{-16} bis 10^{-13} s; d. h. sie ist praktisch unmeßbar klein. Die Energiezustände werden in einem Energiediagramm aufgezeichnet (vgl. Abbn. (7–3) und (7–4)). Die γ-Spektren der Atomkerne sind den optischen Spektren vergleichbar, die beim Übergang der Elektronen von höheren in niedrigere Energiezustände beobachtet werden.

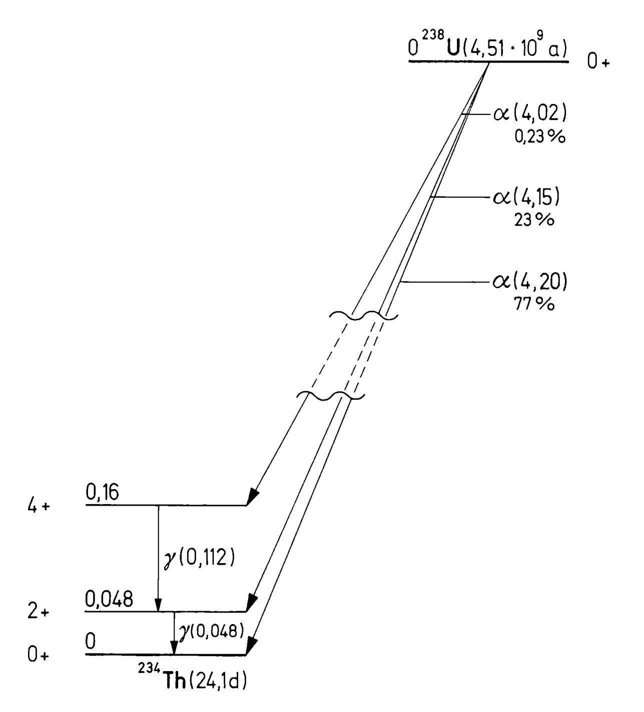


Abb. (7–3) Energiediagramm des U–238; γ-Strahlung nach α-Zerfall (Energien in MeV).

In manchen Fällen treten an Stelle von γ-Quanten auch Elektronen auf, die man als Konversionselektronen bezeichnet. Der Kern gibt dann seine Anregungsenergie nicht in Form von γ-Quanten ab, sondern er überträgt diese Anregungsenergie durch eine direkte Wechselwirkung auf ein Hüllenelektron, vorzugsweise auf ein Elektron der K-Schale (innere Konversion). Dies ist in Abb. (7–5) schematisch aufgezeichnet. Früher nahm man an, daß auch hier zunächst ein γ-Quant auftritt, das dann seine Energie auf ein Elektron überträgt (innerer Photoeffekt). Es ist jedoch inzwischen sichergestellt, daß eine direkte Wechselwirkung zwischen dem Kern und einem Hüllenelektron vorliegt. Diese Wechselwirkung ist verständlich, da gerade die 1s-Elektronen (K-Schale) eine gewisse Aufenthaltswahrscheinlichkeit in unmittelbarer Nähe des Kerns besitzen. Als Symbol für die Konversionselektronen benutzt man die Abkürzung e^-. Nach dem Ausstoß eines Konversionselektrons bleibt — ähnlich wie beim Elektroneneinfang — eine Lücke in der Elektronenschale des betreffenden Atoms, die durch Elektronen aus höheren Energiezuständen aufgefüllt wird. Dabei tritt — ebenso wie beim Elektroneneinfang (K-Strahlung) — charakteristische Röntgenstrahlung auf.

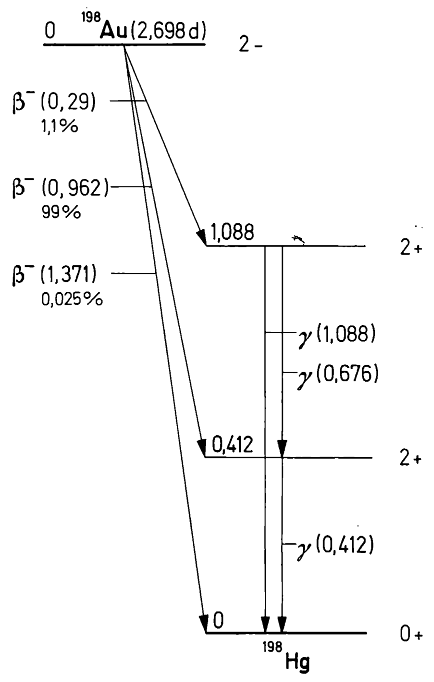


Abb. (7–4) Energiediagramm des Au–198; γ-Strahlung nach β^--Zerfall (Energien in MeV).

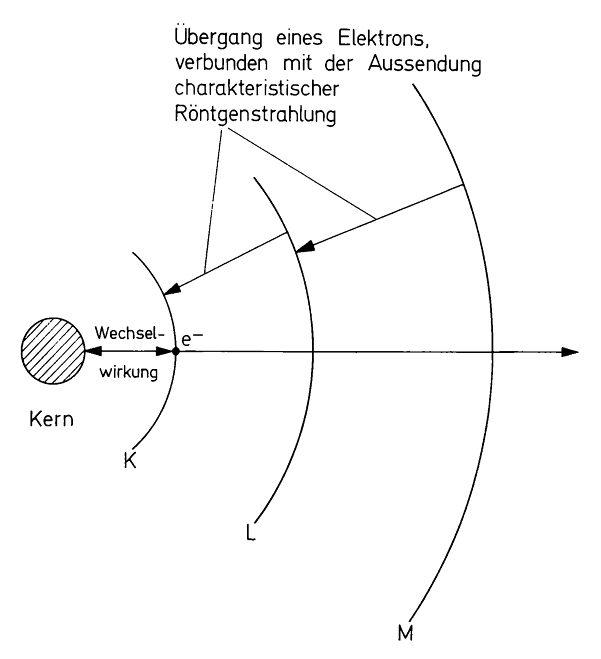


Abb. (7–5) Innere Konversion.

Auf Grund der charakteristischen Röntgenstrahlung kann man nachprüfen, in welcher zeitlichen Reihenfolge die Teilchen vom Kern ausgesandt werden. Zum Beispiel beobachtet man beim Zerfall des ^{214}Pb (RaB) folgende Strahlungsarten: β^-, γ, e^-;

$$^{214}_{82}\mathrm{Pb} \xrightarrow[26{,}8\,\mathrm{min}]{\beta^-,\gamma,e^-} {}^{214}_{83}\mathrm{Bi}.$$

Die charakteristische Röntgenstrahlung, die eine Folge der Aussendung der Konversionselektronen ist, stammt vom Element 83. Damit ist nachgewiesen, daß die Konversion erst nach der β^--Umwandlung stattfindet.

Konversionselektronen werden häufiger beobachtet, wenn die Ordnungszahl relativ groß und die Anregungsenergie der Kerne relativ klein ist (< 0,2 MeV). Der Konversionskoeffizient α gibt das Verhältnis der Zahl der pro Zeiteinheit emittierten Elektronen $\frac{\mathrm{d}N_e}{\mathrm{d}t}$ zu der Zahl der pro Zeiteinheit emittierten γ-Quanten $\frac{\mathrm{d}N_\gamma}{\mathrm{d}t}$ an:

$$\alpha = \frac{\mathrm{d}N_e}{\mathrm{d}t} \Big/ \frac{\mathrm{d}N_\gamma}{\mathrm{d}t} = \frac{\lambda_e}{\lambda_\gamma}; \tag{7.16}$$

λ_e ist die partielle Zerfallskonstante für die Aussendung von Konversionselektronen, λ_γ die partielle Zerfallskonstante für die Aussendung von γ-Quanten. Der Konversionskoeffizient bewegt sich auf Grund dieser Definition zwischen 0 und ∞. Für die innere Konversion in der K-Schale, L-Schale usw. werden partielle Konversionskoeffizienten α_K, α_L usw. angegeben.

In manchen Fällen findet der Übergang vom angeregten Zustand in den Grundzustand nicht unmittelbar im Anschluß an die Umwand-

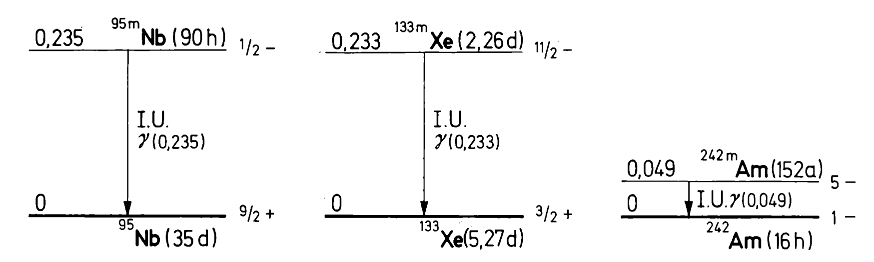


Abb. (7–6) Beispiele für isomere Umwandlungen (Energien in MeV).

lung statt, sondern weitgehend unabhängig von der vorausgehenden α- oder β-Umwandlung. Man spricht dann von einem isomeren (metastabilen) Zustand des betreffenden Nuklids (Kernisomerie, vgl. Abschnitt 1.3.). Den Übergang in den Grundzustand nennt man isomere Umwandlung, abgekürzt I.U. (im angelsächsischen IT = „isomeric transition"). Die Lebensdauer des isomeren Zustandes kann so groß sein, daß man Halbwertzeiten für die isomere Umwandlung findet, die Stunden oder auch Jahre betragen können (vgl. Abb. (7–6)). Nur im Falle der isomeren Umwandlung ist die γ-Strahlung nicht von einer anderen Strahlung (α- oder β-Strahlung) begleitet.

7.1.4. Spontanspaltung

Während die bisher besprochenen Zerfallsarten zu einem großen Teil bei der Untersuchung der natürlichen Radioaktivität des Urans bzw. des Thoriums und ihrer Folgeprodukte aufgeklärt werden konnten, wurde die Spontanspaltung von Atomkernen erst sehr viel später beobachtet. 1938 entdeckten HAHN und STRASSMANN die Spaltung des Urans durch thermische Neutronen; 1940 fanden FLEROV und PETRZHAK, daß die Kerne des Urans sich auch spontan — d. h. ohne Einwirkung von Neutronen — spalten. Die Halbwertzeit der Spontanspaltung des U–238 beträgt $6{,}5 \cdot 10^{15}$ a, die Halbwertzeit des α-Zerfalls $4{,}5 \cdot 10^{9}$ a. Auf etwa 10^{6} α-Zerfälle kommt somit etwa eine Spontanspaltung (Symbol Sp bzw. angelsächsisch SF für „spontaneous fission").

Bei schwereren Nukliden tritt die Spontanspaltung immer mehr in den Vordergrund (vgl. Tab. 7.2.). Bei sehr schweren neutronenreichen Nukliden überwiegt schließlich die Wahrscheinlichkeit der Spontanspaltung die des α-Zerfalls. So beträgt die Halbwertzeit hinsichtlich der Spontanspaltung beim schwersten der zur Zeit bekannten Californiumisotope (Cf–254) nur 60,5 d und beim schwersten der zur Zeit bekannten Fermiumisotope (Fm–256) sogar nur 2,7 h.

Die Bildung ungleicher Bruchstücke (asymmetrische Spaltung) ist sehr stark bevorzugt. Außerdem werden ein oder mehrere Neutronen frei (vgl. Tab. 7.2.).

Energetische Überlegungen zeigen, daß alle Kerne mit Massenzahlen $A > \approx 100$ im Hinblick auf Spontanspaltung instabil sind; d. h. für alle diese Nuklide ist die Energie ΔE der Reaktion

$$A \longrightarrow B + C + \nu n + \Delta E \qquad (7.17)$$

positiv. (B und C sind die Spaltbruchstücke, ν ist die Zahl der bei der

Tabelle 7.2.
Halbwertzeiten für Spontanspaltung

Nuklid	Halbwertzeit der Spontanspaltung	Durchschnittliche Zahl der freiwerdenden Neutronen $\bar{\nu}$
^{232}U	$\approx 8 \cdot 10^{13}$ a	
^{234}U	$2 \cdot 10^{16}$ a	
^{235}U	$1{,}9 \cdot 10^{17}$ a	
^{236}U	$2 \cdot 10^{16}$ a	
^{238}U	$6{,}5 \cdot 10^{15}$ a	
^{236}Pu	$3{,}5 \cdot 10^{9}$ a	$2{,}30 \pm 0{,}19$
^{238}Pu	$4{,}9 \cdot 10^{10}$ a	$2{,}33 \pm 0{,}08$
^{239}Pu	$5{,}5 \cdot 10^{15}$ a	
^{240}Pu	$1{,}34 \cdot 10^{11}$ a	$2{,}26 \pm 0{,}05$
^{242}Pu	$7{,}1 \cdot 10^{10}$ a	$2{,}18 \pm 0{,}09$
^{244}Pu	$2{,}5 \cdot 10^{10}$ a	
^{240}Cm	$7{,}9 \cdot 10^{5}$ a	
^{242}Cm	$7{,}2 \cdot 10^{6}$ a	$2{,}65 \pm 0{,}09$
^{244}Cm	$1{,}31 \cdot 10^{7}$ a	$2{,}84 \pm 0{,}09$
^{246}Cm	$1{,}7 \cdot 10^{7}$ a	
^{248}Cm	$4{,}6 \cdot 10^{6}$ a	
^{250}Cm	$1{,}7 \cdot 10^{4}$ a	
^{246}Cf	2100 a	
^{248}Cf	$\geqslant 1{,}5 \cdot 10^{4}$ a	
^{249}Cf	$1{,}5 \cdot 10^{9}$ a	
^{250}Cf	$1{,}7 \cdot 10^{4}$ a	
^{252}Cf	85 a	$3{,}82 \pm 0{,}12$
^{254}Cf	60,5 d	
^{253}Es	$6{,}4 \cdot 10^{5}$ a	
^{254}Fm	246 d	$4{,}05 \pm 0{,}19$
^{256}Fm	2,8 h	

Werte für $\bar{\nu}$ aus G. T. SEABORG: The Transuranium Elements. Yale University Press, New Haven 1958, Addison-Weseley Publishing Company, Reading, Massachusetts USA, S. 256.

Spaltung freiwerdenden Neutronen n). Daß diese Kerne existenzfähig sind und keine nachweisbare Spontanspaltung zeigen, beruht auf der hohen Energieschwelle für die Spaltung (vgl. Abschn. 8.8.). Sie ist dafür verantwortlich, daß das Periodensystem der Elemente nicht etwa bei der Ordnungszahl 46 aufhört.

7.2. α-Zerfall

7.2.1. Diskussion der Spektren

Die α-Spektren kann man in folgende Gruppen einteilen:

a) Spektren mit nur einer Gruppe oder „Linie“ (Beispiele: ^{222}Rn, ^{218}Po (RaA), ^{210}Po (RaF)). In Spektren dieser Nuklide wird nur eine einzige Linie — d. h. nur eine Energie — beobachtet (Abb. (7–7)).

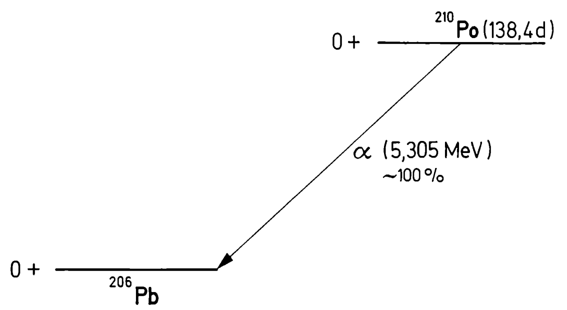


Abb. (7–7) Energiediagramm für den Zerfall des Po–210.

b) Spektren mit zwei oder mehr diskreten Gruppen oder „Linien“ nahe benachbarter Energiewerte (Beispiele: ^{212}Bi (ThC), ^{223}Ra (AcX), ^{224}Ra (ThX), ^{227}Th (RdAc), ^{231}Pa). In Abb. (7–8) ist das Energiediagramm (Zerfallschema) für den Zerfall des ^{212}Bi (ThC) aufgezeichnet, das 7 α-Linien mit nahe benachbarten Energiewerten zeigt. Die verschiedenen α-Linien kommen dadurch zustande, daß das ^{212}Bi beim α-Zerfall in verschiedene angeregte Zustände des Tochternuklids ^{208}Tl (ThC″) übergehen kann.

c) Spektren mit einer Hauptgruppe und Nebengruppen sehr viel höherer Energie. Der Anteil der Nebengruppen beträgt dabei nur 10^{-4} bis 10^{-7}, d. h. die Intensität der Linien der Nebengruppen ist um den Faktor 10^4 bis 10^7 kleiner als die Intensität der Linien der Hauptgruppe (Beispiele: ^{214}Po (RaC′), ^{212}Po (ThC′)). Das Energiediagramm für den Zerfall des ^{212}Po ist in Abb. (7–9) aufgezeichnet. Das ^{212}Po entsteht durch β^--Umwandlung aus ^{212}Bi (ThC). Dabei bilden sich verschiedene angeregte Zustände des ^{212}Po. In den meisten Fällen geht das ^{212}Po zuerst in den Grundzustand über, bevor es sich durch α-Zerfall weiter umwandelt. In sehr seltenen Fällen können aber auch die angeregten Zustände des ^{212}Po durch α-Zerfall direkt in ^{208}Pb übergehen. Auf diese Weise kommen die Nebengruppen mit höheren Energiewerten zustande.

Der α-Zerfall ist in vielen Fällen von einer γ-Strahlung begleitet (Abb. (7–8)), und zwar immer dann, wenn der Kern beim Zerfall nicht

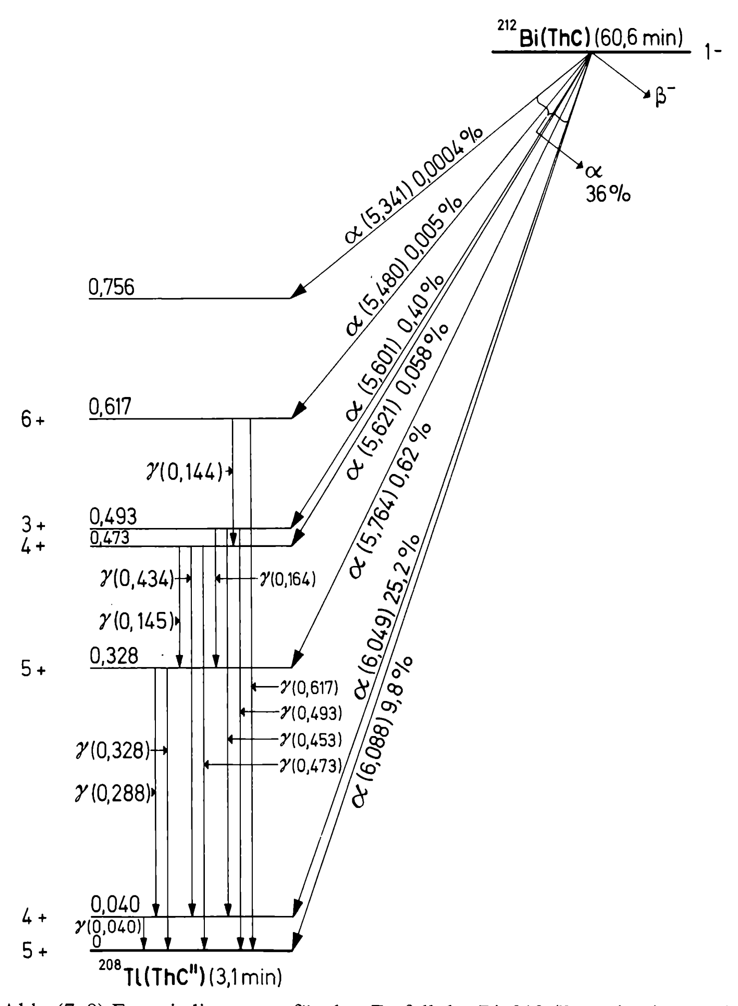


Abb. (7–8) Energiediagramm für den Zerfall des Bi–212 (Energien in MeV).

in den Grundzustand, sondern in einen angeregten Zustand des Tochternuklids übergeht.

Die α-Teilchen besitzen stets eine diskrete Energie E_α. Diese Energie ist etwas kleiner als die beim α-Zerfall freiwerdende Energie ΔE, weil der Kern des Tochternuklids eine Rückstoßenergie E_K erhält. Somit gilt für die Gesamtenergie des α-Zerfalls

$$\Delta E = E_\alpha + E_K. \tag{7.18}$$

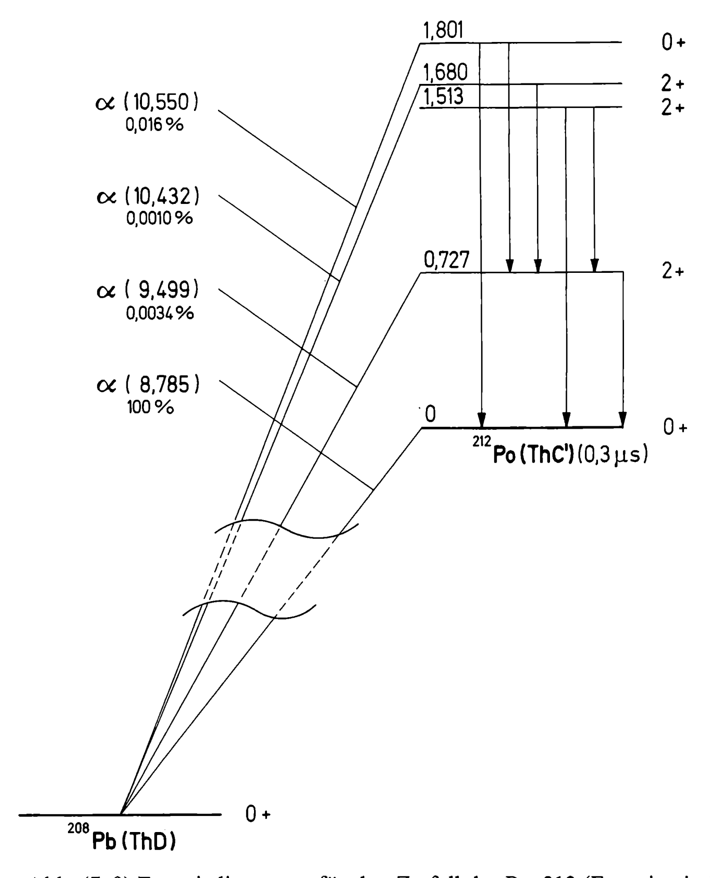


Abb. (7–9) Energiediagramm für den Zerfall des Po–212 (Energien in MeV).

Nach dem Impulssatz ist

$$M_\alpha \cdot v_\alpha = M_K \cdot v_K, \tag{7.19}$$

wenn M die Massen und v die Geschwindigkeiten des α-Teilchens bzw. des Tochternuklids sind. Vernachlässigt man die relativistische Massenänderung, so wird

$$\Delta E = \frac{1}{2} M_\alpha v_\alpha^2 + \frac{1}{2} M_K v_K^2 \tag{7.20}$$

bzw.

$$\Delta E = \frac{1}{2} M_\alpha v_\alpha^2 \left(1 + \frac{M_\alpha}{M_K}\right) \tag{7.21}$$

Die Energie des α-Zerfalls ist somit um den Faktor

$$\left(1 + \frac{M_\alpha}{M_K}\right)$$

höher als die Energie der α-Teilchen, die im Energiediagramm (Abbn. (7–7) bis (7–9)) eingetragen wird.

7.2.2. Theorie des α-Zerfalls

In Tab. 7.3. sind die Energie, die Halbwertzeit und die Zerfallskonstante von α-aktiven Radionukliden aus den Zerfallsreihen des Urans und des Thoriums eingetragen. Die Energie des α-Zerfalls variiert zwi-

Tabelle 7.3.
Energien, Halbwertzeiten und Zerfallskonstanten von natürlich α-aktiven Radionukliden

Nuklid	Zerfallsenergie in MeV	Halbwertzeit	Zerfallskonstante in s^{-1}
^{232}Th	4,01	$1{,}41 \cdot 10^{10}$ a	$1{,}56 \cdot 10^{-18}$
^{238}U	4,20	$4{,}51 \cdot 10^{9}$ a	$4{,}87 \cdot 10^{-18}$
^{235}U	4,58	$7{,}1 \cdot 10^{8}$ a	$3{,}09 \cdot 10^{-17}$
^{234}U	4,77	$2{,}47 \cdot 10^{5}$ a	$8{,}89 \cdot 10^{-14}$
^{226}Ra	4,78	$1{,}602 \cdot 10^{3}$ a	$1{,}37 \cdot 10^{-11}$
^{228}Th	5,43	1,91 a	$1{,}15 \cdot 10^{-8}$
^{222}Rn	5,49	3,82 d	$2{,}10 \cdot 10^{-6}$
^{224}Ra	5,68	3,64 d	$2{,}20 \cdot 10^{-6}$
^{218}Po	6,00	3,05 min	$3{,}78 \cdot 10^{-3}$
^{220}Rn	6,29	55 s	$1{,}26 \cdot 10^{-2}$
^{216}Po	6,78	0,15 s	4,62
^{215}Po	7,38	$1{,}8 \cdot 10^{-3}$ s	$3{,}85 \cdot 10^{2}$
^{214}Po	7,69	$1{,}64 \cdot 10^{-4}$ s	$4{,}23 \cdot 10^{3}$
^{212}Po	8,78	$3{,}0 \cdot 10^{-7}$ s	$2{,}31 \cdot 10^{6}$

schen 4 und 9 MeV, aber die Halbwertzeit bzw. die Zerfallskonstante um etwa 24 Zehnerpotenzen. Die Zerfallskonstante ist um so größer, je höher die Energie des α-Zerfalls ist. Da die Reichweite der α-Teilchen in Luft mit ihrer Energie ansteigt (vgl. Abschn. 6.2.2.), gilt zwischen der Zerfallskonstanten und der Reichweite R eine Beziehung, die folgendermaßen formuliert werden kann:

$$\lg \lambda = a \lg R + b. \qquad (7.22)$$

Diese Gesetzmäßigkeit wurde erstmals von GEIGER und NUTTALL (1911) festgestellt. In Abb. (7–10) ist diese Beziehung für die α-aktiven

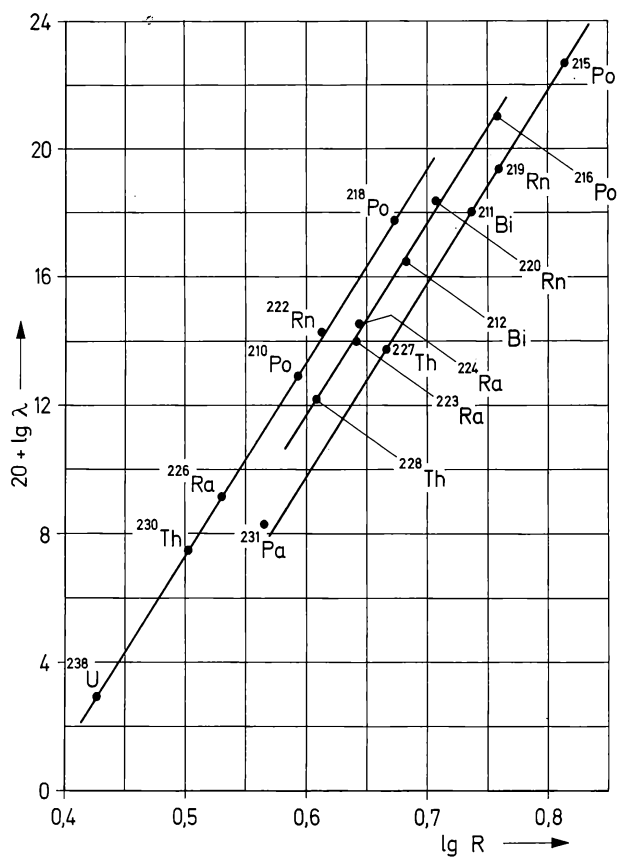


Abb. (7–10) Zusammenhang zwischen Reichweite (in cm) und Zerfallskonstante (in s^{-1}) (Geiger-Nuttallsche Regel). Nach H. GEIGER: Z. Physic. **8** (1921) 45.

Radionuklide der natürlichen Zerfallsreihen des Urans, Thoriums und Actiniums graphisch dargestellt. Alle α-aktiven Nuklide der einzelnen Zerfallsreihen liegen jeweils auf Geraden, die parallel verlaufen; d. h. für jede Zerfallsreihe sind a und b konstant. Für die Zerfallskonstante als Funktion der Energie des α-Zerfalls gilt eine ähnliche Beziehung:

$$\lg \lambda = a' \lg E + b'. \qquad (7.23)$$

Diese Beziehung besagt, daß die Wahrscheinlichkeit des α-Zerfalls nur von der Energiedifferenz ΔE zwischen dem Anfangszustand (Nuklid A) und dem Endzustand (Nuklid B + α-Teilchen) abhängt (Gl. (6.1)).

Die Deutung des α-Zerfalls stieß zunächst auf erhebliche Schwierigkeiten. Zum Beispiel zeigten die Streuversuche mit α-Teilchen an ^{238}U, daß auch bei relativ hoher Energie (8,95 MeV für die α-Strahlung des ^{212}Po) die Coulombsche Abstoßung des Kerns wirksam ist. Dieses Abstoßungspotential läßt sich durch die Gleichung

$$U(r) = \frac{2Ze^2}{r} \tag{7.24}$$

beschreiben; es ist in Abb. (7–11) aufgetragen. Der Eintritt eines α-Teil-

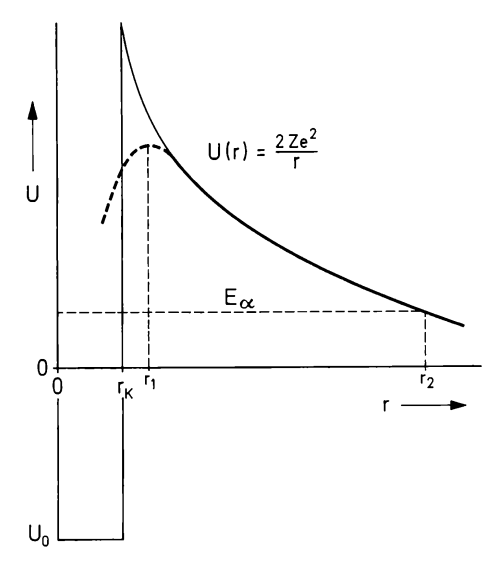


Abb. (7–11) Potentialverlauf für die Wechselwirkung zwischen einem Kern und einem α-Teilchen.

chens in den Kern wird somit durch eine verhältnismäßig hohe Potentialschwelle (> 9 MeV) verhindert. Innerhalb des Kerns sind anziehende Kräfte wirksam, die das α-Teilchen mit einer gewissen Bindungsenergie festhalten. Der Potentialverlauf im Innern des Kerns ist nicht genau bekannt; er kann durch einen konstanten Wert U_0 angenähert werden (Abb. (7–11)). Dieses Potential U_0 ist innerhalb des sogenannten effektiven Kernradius r_K wirksam (Potentialtopf von der Tiefe U_0 und dem Durchmesser $2r_K$). Nach den Gesetzen der klassischen Mechanik müßte ein α-Teilchen, das den Kern verläßt, eine kinetische Energie besitzen, die mindestens so groß ist wie die Potentialschwelle; d. h. im vorliegenden Falle müßte $E > 9$ MeV sein. Die α-

Teilchen, die den Urankern verlassen,besitzen aber nur eine Energie von etwa 4 MeV; sie können also nicht über die Potentialschwelle hinweggekommen sein.

Die Lösung dieses Problems ergab sich erst aus der Wellenmechanik, die von GAMOW sowie unabhängig davon von CONDON und GURNEY 1928 auf den α-Zerfall angewendet wurde. Dabei zeigte sich, daß das α-Teilchen eine gewisse Wahrscheinlichkeit hat, durch die Potentialschwelle „hindurchzutunneln“ (Tunneleffekt). Die Durchlässigkeit P einer einfachen Potentialschwelle ist gegeben durch den Ausdruck

$$P = \exp\left[-\frac{2\sqrt{2\,M_\alpha}}{\hbar}\int\sqrt{U(r)-E}\,dr\right]. \tag{7.25}$$

Darin sind $\hbar = \dfrac{h}{2\pi}$, M_α die Masse des α-Teilchens, $U(r)$ das Potential und E die Energie des α-Zerfalls; integriert wird über den gesamten Bereich, in dem $U(r) > E$ ist. Näherungsweise folgt aus Gl. (7.25) für die Zerfallskonstante λ

$$\lg\lambda = \lg\frac{v_\alpha}{r_K} - \frac{4\pi e^2(Z-2)}{2{,}3\,\hbar v_\alpha} + \frac{8\,e}{2{,}3\,\hbar}\sqrt{(Z-2)r_K M_\alpha} + \dots . \tag{7.26}$$

v_α und r_K sind verhältnismäßig klein; deshalb ist der erste Term auf der rechten Seite nahezu konstant. Der dritte Term und alle höheren Glieder sind verhältnismäßig klein und können mit dem ersten Term zu einer Konstanten zusammengefaßt werden:

$$\lg\lambda \approx a - b\frac{(Z-2)}{v_\alpha} \tag{7.27}$$

oder

$$\lg\lambda \approx a - b\frac{(Z-2)}{\sqrt{\dfrac{2\,E_\alpha}{m_\alpha}}}. \tag{7.28}$$

Diese Gleichungen haben eine gewisse Ähnlichkeit mit der Geiger-Nuttallschen Regel (Gl. (7.22)) und zeigen gute Übereinstimmung mit dem Experiment, sofern es sich um Nuklide mit gerader Ordnungszahl und gerader Massenzahl (g,g-Kerne) handelt (vgl. Abb. (7–12)).

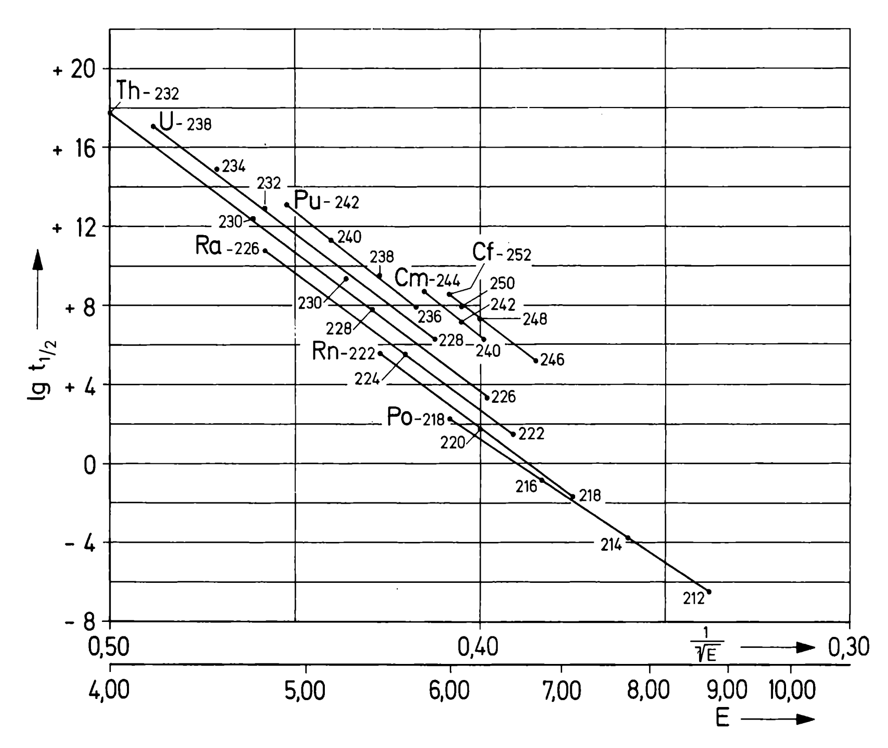


Abb. (7–12) Zusammenhang zwischen Halbwertzeit (in s) und Energie (in MeV) des α-Zerfalls für g, g-Kerne.

Aus der Halbwertzeit und der Energie des α-Zerfalls kann mit Hilfe von Gl. (7.26) der effektive Radius r_K des Kerns (effektiv hinsichtlich des α-Zerfalls) berechnet werden. Dieser gehorcht für alle g,g-Kerne recht gut der Beziehung

$$r_K = r_0 A^{1/3} \tag{7.29}$$

(vgl. Gl. (2.2) in Abschn. 2.1.), wobei r_0 nur sehr wenig um den Mittelwert $1{,}53 \cdot 10^{-13}$ cm (10^{-13} cm $= 1$ fm) schwankt.

Wie bereits erwähnt, besteht nur bei g,g-Kernen Übereinstimmung mit der Theorie, und auch dann nur bei Umwandlungen in den Grundzustand oder in den ersten angeregten Zustand. Der Grundzustand der g,g-Kerne hat den Kernspin Null und gerade Parität; der erste angeregte Zustand hat den Kernspin 2 und gerade Parität. In allen anderen Fällen ist die Halbwertzeit für den α-Zerfall meist größer, als sich aus den vorausgehenden theoretischen Überlegungen ergibt, und zwar sind die Werte bis um den Faktor 10^4 höher. Diese Behinderung des

α-Zerfalls muß auf die Änderung des Drehimpulses oder des Quadrupolmomentes (Abweichungen von der Kugelsymmetrie) zurückgeführt werden. Eine befriedigende theoretische Deutung liegt noch nicht vor.

7.3. β-Zerfall

7.3.1. Diskussion der Spektren

Die β-Spektren zeigen im Gegensatz zu den α-Spektren keine „Linien", die einer bestimmten Energie entsprechen, sondern eine kontinuierliche Energieverteilung (Abb. (6–14)). Weitere Beispiele für β-Spektren sind in den Abbn. (7–13) und (7–14) wiedergegeben; in diesen Abbildungen ist $N(E)$, die Zahl der Elektronen mit einer bestimmten Energie E, als Funktion der Energie E aufgezeichnet. Das β-Spektrum des Cl–36 (Abb. (7–13)) entspricht einem einzigen Übergang in

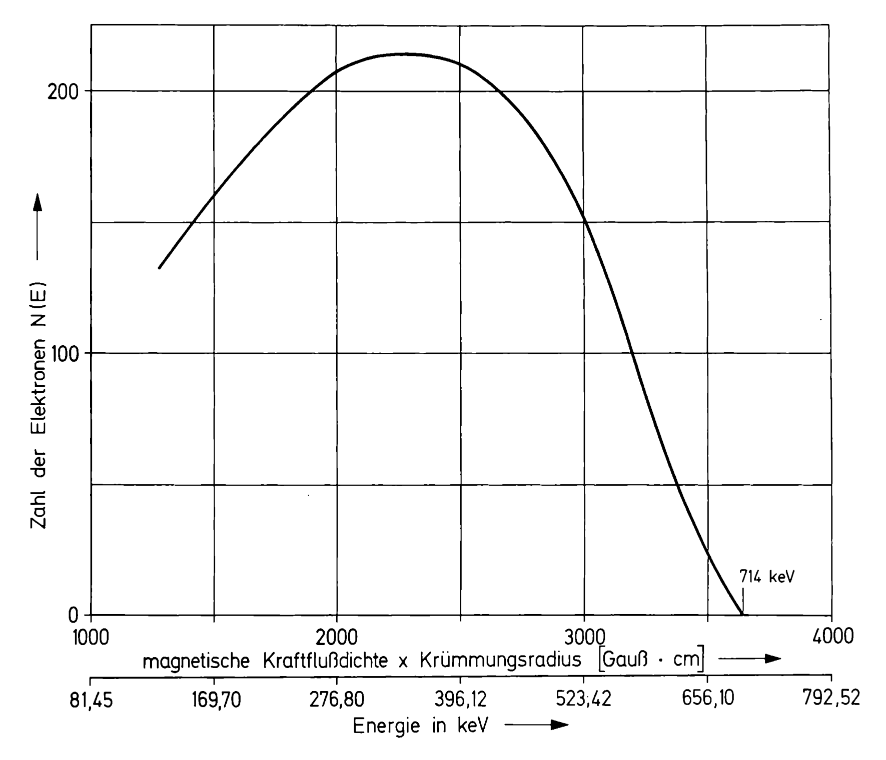


Abb. (7–13) β-Spektrum des Cl–36. Nach C. S. Wu u. L. Feldman: Physic Rev. **76** (1949) 693; L. Feldman u. C. S. Wu: Physic Rev. **87** (1952) 1091.

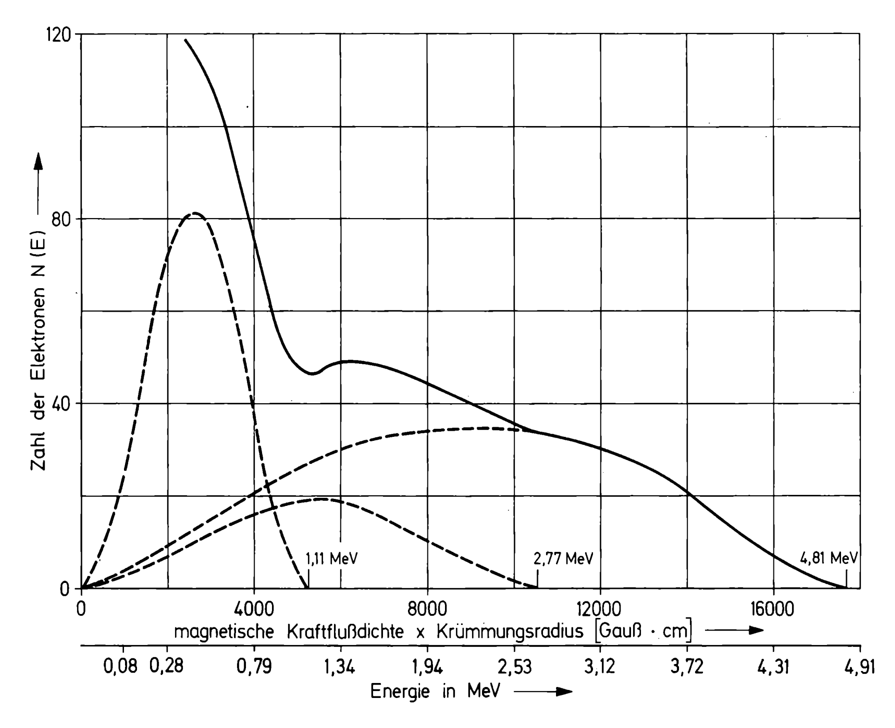


Abb. (7–14) β-Spektrum des Cl–38. Nach L. M. LANGER: Physic. Rev. **77** (1950) 50.

den Grundzustand des Ar–36; das β-Spektrum des Cl–38 (Abb. (7–14)) kommt durch die Überlagerung von drei Übergängen zustande (ein Übergang in den Grundzustand und zwei Übergänge in angeregte Zustände des Ar–38). Die zugehörigen Zerfallschemata sind in den Abbn. (7–15) und (7–16) aufgezeichnet.

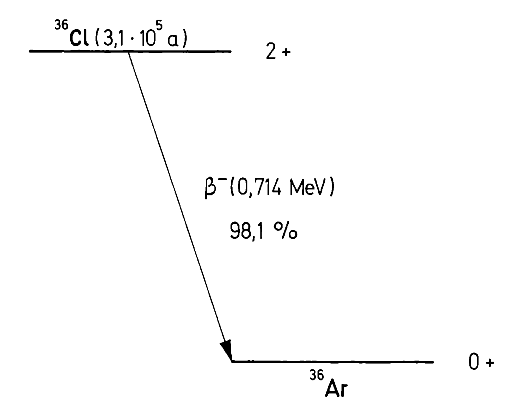


Abb. (7–15) Energiediagramm für den Zerfall des Cl–36.

Die kontinuierliche Energieverteilung bedeutet scheinbar einen Verstoß gegen das Energieprinzip: Der Kern des Mutternuklids befindet sich in einem definierten Energiezustand, ebenso der Kern des Tochternuklids. Die Energie des ausgesandten Elektrons ist jedoch nicht gleich der Differenz dieser beiden Energiezustände. Sie schwankt vielmehr zwischen Null und einer Maximalenergie E_{max}. Diese Maximalenergie entspricht der Differenz der Energiezustände im Energiediagramm. Die mittlere Energie der Elektronen beträgt nur etwa ein Drittel der Maximalenergie. Die kontinuierliche Energieverteilung der β-Spektren beruht darauf, daß gleichzeitig mit dem Elektron bzw. Positron ein Antineutrino bzw. Neutrino ausgesandt wird, das einen Teil der Zerfallsenergie erhält. Die Summe der Energien des Elektrons bzw. Positrons und des Antineutrinos bzw. Neutrinos ist gleich der Maximalenergie:

$$E_{\text{e}} + E_{\nu} = E_{\text{max}}. \tag{7.30}$$

Man unterscheidet einfache β-Spektren, die nur eine Maximalenergie zeigen (Abb. (7–13)), und komplexe β-Spektren mit mehreren Ma-

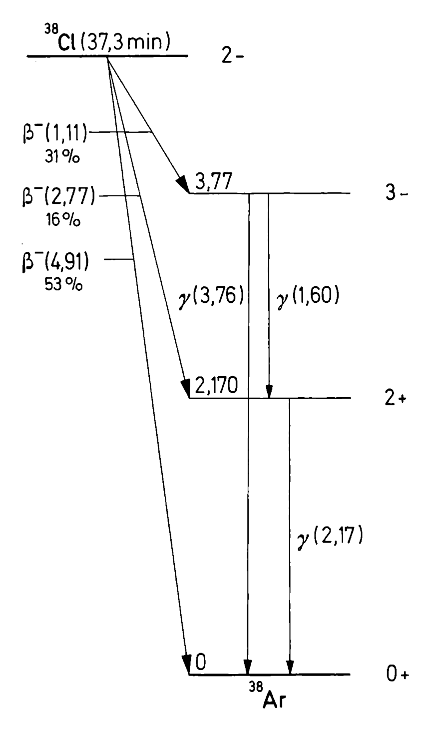


Abb. (7–16) Energiediagramm für den Zerfall des Cl–38 (Energien in MeV).

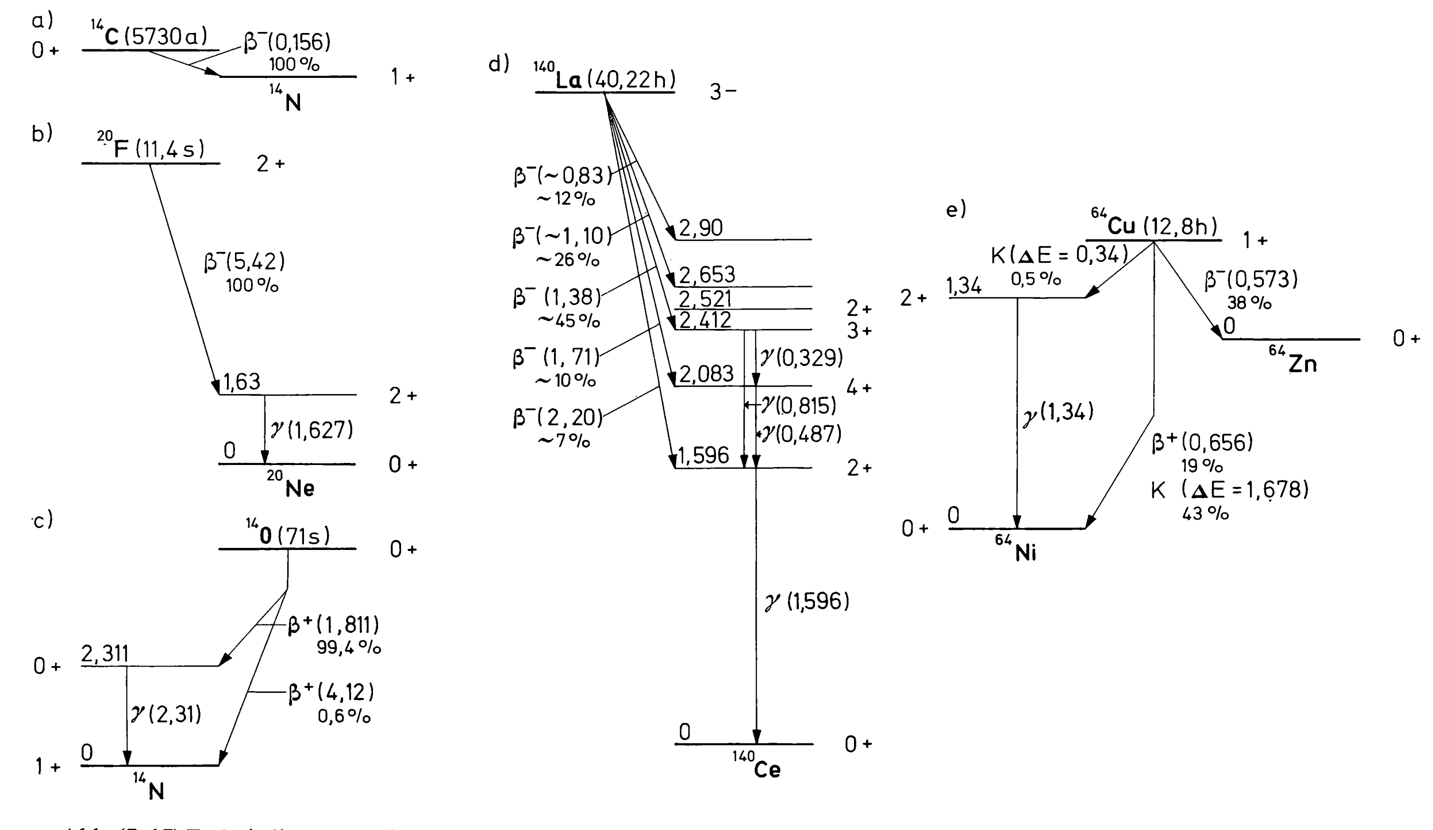


Abb. (7–17) Energiediagramme für den Zerfall von a) C–14 b) F–20 c) O–14 d) La–140 e) Cu–64 (Energien in MeV).

ximalenergien (Abb. (7–14)). In Abb. (7–17) sind einige weitere Energiediagramme für β-aktive Radionuklide aufgezeichnet. C–14 und F–20 besitzen ein einfaches Energiediagramm (einfaches β-Spektrum). C–14 ist ein reiner β-Strahler; F–20 sendet zusätzlich γ-Strahlen aus. O–14, La–140 und Cu–64 zeigen mehrere β-Übergänge. Cu–64 sendet sowohl Elektronen als auch Positronen aus und fängt außerdem Elektronen ein (K-Strahlung).

Im Gegensatz zu den Elektronen bzw. Positronen, die beim β-Zerfall auftreten, besitzen die Konversionselektronen stets eine einheitliche Energie; d. h. sie sind monoenergetisch. Im Spektrum wird nur eine „Linie“ beobachtet. Bei der Konversion wird die Energie nicht auf ein Elektron und ein Neutrino aufgeteilt, sondern das Konversionselektron erhält die gesamte Energie des angeregten Zustandes.

7.3.2. Theorie des β-Zerfalls

Das theoretische Verständnis des β-Zerfalls bereitete vor Einführung der Neutrinohypothese einige Schwierigkeiten. Zunächst stand die kontinuierliche Energieverteilung — wie bereits erwähnt — im Widerspruch zum Energieprinzip. Nach dem Impulserhaltungssatz sollte der Gesamtdrehimpuls eines Systems konstant bleiben. Der Kern B, der aus dem Kern A durch β-Zerfall hervorgeht,

$$A \longrightarrow B + e^-, \tag{7.31}$$

hat die gleiche Massenzahl wie der Kern A und muß deshalb entweder den gleichen Gesamtbahndrehimpuls haben wie der Kern A oder einen Wert, der sich davon um ein ganzzahliges Vielfaches von $\frac{h}{2\pi}$ unterscheidet (vgl. Abschn. 2.4.). Auch der Gesamtspin des Kerns B kann höchstens um ein ganzzahliges Vielfaches von $\frac{h}{2\pi}$ von dem des Kerns A verschieden sein. Der Spin des Elektrons beträgt aber $\frac{1}{2}\frac{h}{2\pi}$. Nach dem Impulserhaltungssatz fehlt also ein Betrag von der Größe $\frac{1}{2}\frac{h}{2\pi}$ (oder ein anderes ungeradzahliges Vielfaches davon). Schließlich müßte sich nach Gl. (7.31) auch die Statistik ändern (entweder von der Fermi-Dirac-Statistik zur Bose-Einstein-Statistik oder umgekehrt), weil die Zahl der Teilchen sich um eins ändert. Durch die Neutrino-

hypothese (Fermi 1934) wurden diese Schwierigkeiten beseitigt. Dem Neutrino (Symbol ν) wurden die Eigenschaften zugeschrieben, die im Einklang mit der Theorie standen: Keine Ladung, sehr kleine Masse oder Masse Null ($m_\nu < \frac{1}{1000} m_e$), kein elektromagnetisches Feld (im Gegensatz zu den Lichtquanten), Spin $\frac{1}{2} \frac{h}{2\pi}$, gehorcht der Fermi-Dirac-Statistik.

Unter Berücksichtigung des Neutrinos ν bzw. Antineutrinos $\bar{\nu}$ gelten für den β-Zerfall die folgenden Reaktionsgleichungen:

$$\beta^- : {}^1_0\text{n}\,(\text{Kern}) \rightarrow {}^1_1\text{p}\,(\text{Kern}) + {}_{-1}^{\;\;0}\text{e} + \bar{\nu} \tag{7.32}$$

$$\beta^+ : {}^1_1\text{p}\,(\text{Kern}) \rightarrow {}^1_0\text{n}\,(\text{Kern}) + {}^0_1\text{e} + \nu \tag{7.33}$$

Man nimmt an, daß sich beim β^--Zerfall intermediär ein Proton und ein negatives Meson bildet, beim β^+-Zerfall ein Neutron und ein positives Meson (YUKAWA).

Der Elektroneneinfang (K-Strahlung) muß durch folgende Gleichung beschrieben werden:

$${}^1_1\text{p}\,(\text{Kern}) + {}_{-1}^{\;\;0}\text{e}\,(\text{Hülle}) \longrightarrow {}^1_0\text{n}\,(\text{Kern}) + \nu. \tag{7.34}$$

Die aus der Massendifferenz berechenbare Zerfallsenergie ΔE ist gleich der Energie des Neutrinos E_ν, der Bindungsenergie des Hüllenelektrons E_e und der Rückstoßenergie des Kerns E_K

$$\Delta E = E_\nu + E_e + E_K. \tag{7.35}$$

Im allgemeinen ist ΔE von der Größenordnung 1 MeV, d. h. sehr viel größer als E_e; außerdem ist die Rückstoßenergie E_K des Kerns sehr viel kleiner als die Energie E_ν des Neutrinos. Daraus folgt

$$\Delta E \approx E_\nu; \tag{7.36}$$

d. h., die beim Elektroneneinfang freiwerdende Energie wird praktisch vollständig auf das Neutrino übertragen.

Der Nachweis der Neutrinos bzw. Antineutrinos ist sehr schwierig, weil sie nur eine außerordentlich geringe Wechselwirkung mit Materie besitzen (Wirkungsquerschnitt für die Reaktion mit Protonen $\approx$ $\approx 10^{-43}$ cm^2). Er gelang auf Grund der Reaktion mit den Protonen

des Wassers in einem Tank, der mit sehr großen Szintillationszählern ausgerüstet war (1956). Die Neutrinos stammten aus einem Kernreaktor; sie reagierten nach folgender Gleichung:

$$\bar{\nu} + {}^{1}_{1}\mathrm{p} \longrightarrow {}^{1}_{0}\mathrm{n} + {}^{0}_{1}\mathrm{e}. \tag{7.37}$$

Diese Reaktion kann als eine Umkehrung der Reaktion (7.32) angesehen werden. Die gleichzeitige Entstehung eines Neutrons und eines Positrons wurde durch Koinzidenzmessungen nachgewiesen. Das Positron reagiert sofort mit einem Elektron unter Bildung von zwei γ-Quanten (Vernichtungsstrahlung). Das Neutron wird durch Zusammenstoß mit Wasserstoffatomen abgebremst und von gleichzeitig anwesenden Cadmiumatomen in einer (n, γ)-Reaktion eingefangen. Das dabei auftretende γ-Quant erscheint einige μs später als die Vernichtungsstrahlung.

Ähnlich wie für α-Strahlen in der Geiger-Nuttallschen Regel lassen sich zwischen der Maximalenergie der β-Strahlung und der Zerfallswahrscheinlichkeit des betreffenden Nuklids empirische Beziehungen aufstellen (SARGENT 1933):

$$\lg \lambda = a + b \lg E_{\mathrm{max}}. \tag{7.38}$$

Für leichte, mittelschwere und schwere Nuklide erhält man getrennte Kurven (Sargent-Diagramme).

FERMI behandelte den β-Zerfall quantenmechanisch (in ähnlicher Weise wie die Aussendung elektromagnetischer Strahlung) und erhielt für die Energieverteilung folgende Formel:

$$P(E_{\mathrm{K}})\,\mathrm{d}E_{\mathrm{K}} = G^2\,|M|^2\,F(Z,E_{\mathrm{K}})\,(E_{\mathrm{K}} + m_0c^2)\,(E_{\mathrm{K}}^2 + 2m_0c^2\,E_{\mathrm{K}})^{1/2}\,(E_0 - E_{\mathrm{K}})^2\,\mathrm{d}E_{\mathrm{K}} \tag{7.39}$$

P ist der Bruchteil der Kerne, die pro Zeiteinheit zerfallen und dabei ein β-Teilchen mit der kinetischen Energie E_{K} aussenden; der Faktor $G^2\,|M|^2$ ist die relative Wahrscheinlichkeit für den β-Zerfall (M ist eine quantenmechanische Größe, die auch als Matrixelement bezeichnet wird); F ist eine Funktion, die den Einfluß der Coulomb-Kräfte des Kerns auf das β-Teilchen beschreibt: Elektronen werden durch die positive Ladung des Kerns abgebremst, Positronen werden beschleunigt. Dadurch verschiebt sich das Spektrum insbesondere im Bereich niedriger Energie: Es werden verhältnismäßig mehr β^--Teilchen nied-

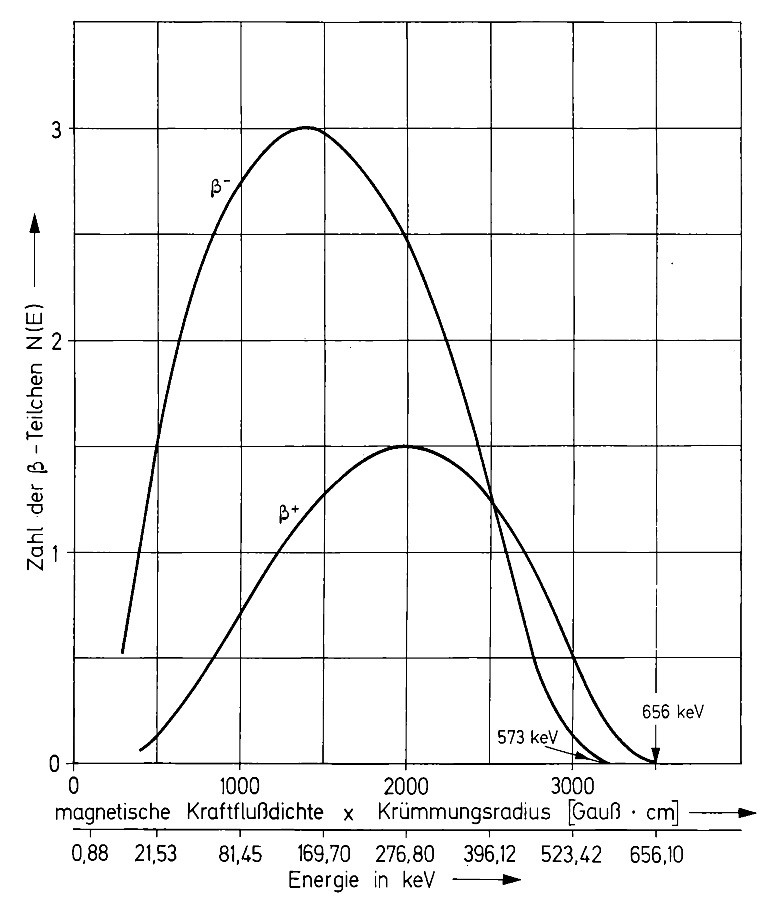


Abb. (7–18) Energieverteilung der Elektronen und Positronen beim Zerfall des Cu–64. Nach C. S. Cook u. L. M. Langer: Physic. Rev. **73** (1948) 601.

riger Energie gefunden als β^+-Teilchen (vgl. Abb. (7–18)). Die anderen Größen auf der rechten Seite von Gl. (7.39) stellen einen statistischen Faktor dar, der angibt, welcher Bruchteil der Zerfallsenergie E_0 auf das Elektron übertragen wird. m_0 ist die Ruhemasse des Elektrons.

Häufig rechnet man auch mit der Verteilung des Moments p_e der Elektronen. Da die Zahl der Prozesse in beiden Fällen (Verteilung der kinetischen Energie E_K oder Verteilung des Moments p_e) gleich ist, gilt $P(E_K)\,dE_K = P(p_e)\,dp_e$. Die Größe $(E_K^2 + 2m_0 c^2 E_K)^{1/2}$ ist bei relativistischer Betrachtung gleich dem Moment $p_e c$. Man erhält anstelle der Gl. (7.39)

$$P(p_e)\,dp_e = c\,G^2\,|M|^2\,F(Z, p_e)\,p_e^2(E_0 - E_K)^2\,dp_e. \qquad (7.40)$$

Zur genaueren Prüfung dieser Beziehung führt man eine „Fermi-Aufzeichnung“ oder „Kurie-Aufzeichnung“ durch. Dabei wird die Größe M in Gl. (7.40) als konstant angenommen. Die Funktion

$$\left[\frac{P(p_e)}{p_e^2\,F(Z, p_e)}\right]^{1/2} \sim (E_o - E_K) \qquad (7.41)$$

wird in Abhängigkeit von E_K aufgezeichnet. Abb. (7–19) zeigt als Beispiel eine solche „Kurie-Aufzeichnung“ für Tritium. Dabei wird eine Gerade erhalten, die einen verhältnismäßig genauen Wert für die Maximalenergie E_{max} liefert. Für alle „erlaubten“ β-Umwandlungen ist die Übereinstimmung mit der Theorie gut. Bei den „verbotenen“ β-Umwandlungen sind die Halbwertzeiten verhältnismäßig groß; außerdem weicht das Spektrum sehr stark von dem normalen Verlauf ab.

Theoretische Werte für die Zerfallskonstante λ können durch Integration der Gl. (7.39) erhalten werden:

$$\lambda = \int_0^{E_o} P(E_K)\,dE_K. \qquad (7.42)$$

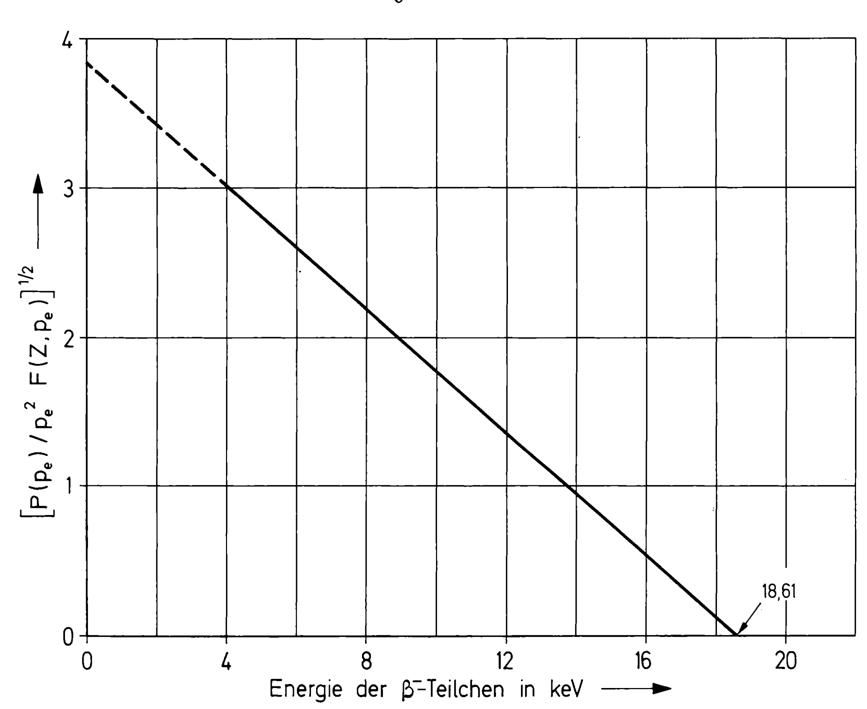


Abb. (7–19) Kurie-Aufzeichnung für Tritium. Nach F. T. PORTER: Physic. Rev. **115** (1959) 450.

Für den Fall des „erlaubten“ β-Zerfalls und verhältnismäßig hoher Zerfallsenergie E_0 können bei Nukliden mit niedriger Ordnungszahl die Faktoren $G^2 |M|^2 F(Z, E_K)$ durch eine Konstante G'^2 ersetzt werden; die Integration liefert als Näherungswert

$$\lambda \approx k E_0^5 \quad \text{bzw.} \quad \lg \lambda \approx \lg k + 5 \lg E_0. \tag{7.43}$$

Die Steigung 5 stimmt recht gut mit dem Verlauf der Kurven in den Sargent-Diagrammen überein. Bei höheren Ordnungszahlen Z kann $F(Z, E_K)$ nicht mehr als konstant angesehen werden. Zieht man die konstanten Größen und das Matrixelement M vor das Integral, so wird

$$\lambda = G^2 |M|^2 \int_0^{E_0} F(Z, E_K)(E_K + m_0 c^2)(E_K^2 + 2 m_0 c^2 E_K)^{1/2} (E_0 - E_K)^2 \, dE_K \tag{7.44}$$

oder

$$\lambda = G^2 |M|^2 f, \tag{7.45}$$

wenn man die Größe f zur Abkürzung für das Integral in Gl. (7.44) einführt. Da $\lambda = \frac{\ln 2}{t_{1/2}}$ ist, sollte

$$f t_{1/2} = \frac{\ln 2}{G^2 |M|^2} \tag{7.46}$$

für alle Nuklide mit ähnlichem Matrixelement M gleich sein. Der $f t_{1/2}$-Wert, der meist kurz als ft-Wert bezeichnet wird, dient deshalb zur Klassifizierung des β-Zerfalls. „Erlaubte“ Umwandlungen besitzen niedrige ft-Werte, „verbotene“ Umwandlungen hohe ft-Werte. Durch Auswertung des Integrals in Gl. (7.44) erhält man folgende Näherungswerte für f:

$$\lg f(\beta^-) = 4{,}0 \lg E_0 + 0{,}78 + 0{,}02\, Z - 0{,}005 (Z - 1) \lg E_0, \tag{7.47}$$

$$\lg f(\beta^+) = 4{,}0 \lg E_0 + 0{,}79 - 0{,}007\, Z - 0{,}009 (Z + 1) \left(\lg \frac{E_0}{3}\right)^2, \tag{7.48}$$

$$\lg f(K) = 2{,}0 \lg E_0 - 5{,}6 + 3{,}5 \lg (Z + 1); \tag{7.49}$$

E_0 ist die Zerfallsenergie in MeV und Z die Ordnungszahl des entstehenden Nuklids.

Tabelle 7.4.
ft-Werte und Auswahlregeln für β-Umwandlungen

Klassifizierung der Umwandlung	Änderung der Bahndrehimpuls-quantenzahl ΔL	Änderung des Kernspins ΔI	Änderung der Parität	$\lg ft$	Beispiele
Erlaubt (begünstigt)	0	0	nein	2,7 – 3,7	n, ^{3}H, ^{6}He ($\Delta I = 1$!), ^{11}C, ^{13}N, ^{15}O, ^{17}F, ^{19}Ne, ^{21}Na, ^{23}Mg, ^{25}Al, ^{27}Si, ^{29}P, ^{31}S, ^{33}Cl, ^{35}Ar, ^{37}K, ^{39}Ca, ^{41}Sc, ^{43}Ti
Erlaubt (normal)	0	0 oder 1	nein	4 – 7	^{12}B, ^{12}N, ^{35}S, ^{64}Cu, ^{69}Zn, ^{114}In
Erlaubt (l-verboten)	2	1	nein	6 – 9	^{14}C, ^{32}P
Einfach verboten	1	0 oder 1	ja	6 – 10	^{111}Ag, ^{143}Ce, ^{115}Cd, ^{187}W
Einfach verboten (Sonderfälle)	1	2	ja	7 – 10	^{38}Cl, ^{90}Sr, ^{97}Zr, ^{140}Ba
Zweifach verboten	2	2	nein	11 – 14	^{36}Cl, ^{99}Tc, ^{135}Cs, ^{137}Cs
Zweifach verboten (Sonderfälle)	2	3	nein	$\approx$ 14	^{10}Be, ^{22}Na
Dreifach verboten	3	3	ja	17 – 19	^{87}Rb
Dreifach verboten (Sonderfälle)	3	4	ja	$\approx$ 18	^{40}K
Vierfach verboten	4	4	nein	$\approx$ 23	^{115}In

Das Verhältnis Elektroneneinfang zu β^+-Strahlung ist für ein bestimmtes Nuklid annähernd gegeben durch $f(K)/f(\beta^+)$; es wächst mit der Ordnungszahl Z an und ist bei geringerer Zerfallsenergie E_0 höher. In den meisten Fällen werden K-Elektronen eingefangen, weil diese die größte Aufenthaltswahrscheinlichkeit in der Nähe des Kerns besitzen. Wenn die Zerfallsenergie jedoch geringer ist als die Bindungsenergie der K-Elektronen, dann ist nur der Einfang von Elektronen aus höheren Bahnen möglich.

In Tab. 7.4. sind *ft*-Werte und Auswahlregeln für „erlaubte" und „verbotene" β-Umwandlungen angegeben. Die Einteilung ist im wesentlichen an die Klassifizierung von FERMI angelehnt; die Klassifizierung von GAMOW und TELLER weicht ein wenig davon ab. Besonders niedrige *ft*-Werte zeigen die Nuklide, die durch β-Umwandlung in ein sogenanntes Spiegelbild-Nuklid übergehen — d. h. in ein Nuklid, bei dem die Zahl der Neutronen und der Protonen gegenüber dem Ausgangsnuklid vertauscht ist — z. B.

$$^{17}_{9}F \longrightarrow {}^{17}_{8}O + {}^{0}_{1}e^+ + \nu. \qquad (7.50)$$

Das F–17 besitzt 9 Protonen und 8 Neutronen, das O–17   8 Proto-

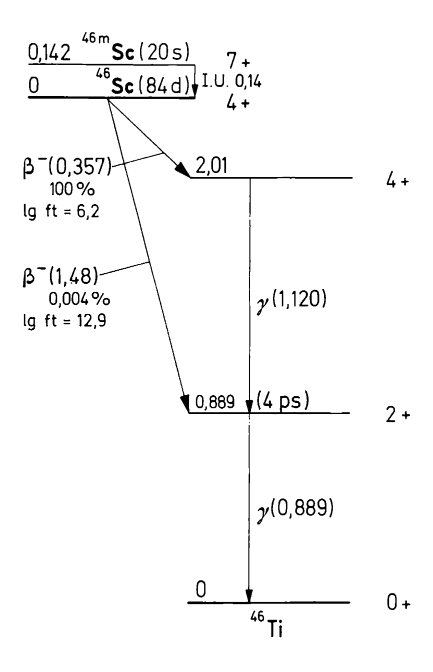


Abb. (7–20) Energiediagramm für den Zerfall des Sc–46m (Energien in MeV).

nen und 9 Neutronen. Eine solche Umwandlung wird als „begünstigt" bezeichnet.

Als Beispiel für die Anwendung der in Tab. 7.4. aufgeführten Auswahlregeln sei das Zerfallschema des Sc–46 ausgewählt (Abb. (7–20)). Dieses Radionuklid geht zu nahezu 100% in den zweiten angeregten Zustand des Tochternuklids Ti–46 über. Die Halbwertzeit beträgt 83,9 d $= 7{,}25 \cdot 10^6$ s; aus Gl. (7.47) folgt $\lg f = -0{,}52$ und daraus $\lg ft = 6{,}3$. Dieser Wert stimmt gut mit dem in Tab. 7.4. für eine „erlaubte normale" Umwandlung angegebenen Wert überein ($4+ \rightarrow 4+$, $\Delta I = 0$, keine Änderung der Parität). Der Übergang in den ersten angeregten Zustand findet sehr viel seltener statt, und zwar nur zu 0,004%; d. h. t ist um den Faktor 100/0,004 größer. Daraus folgt $t = 1{,}81 \cdot 10^{11}$ s und $\lg ft = 13{,}1$. Auch dieser Wert stimmt mit Tab. 7.4. überein (2-fach „verbotene" Umwandlung, $4+ \rightarrow 2+$, $\Delta I = 2$, keine Änderung der Parität). Für den Übergang in den Grundzustand, der 4-fach verboten ist, berechnet man eine Wahrscheinlichkeit von etwa $2 \cdot 10^{-12}$ %; diese ist so gering, daß sie praktisch nicht beobachtet werden kann.

Beim β-Zerfall tritt noch eine weitere Besonderheit auf, die erstmals 1957 von Wu am Co–60 nachgewiesen wurde: Die Parität bleibt beim β-Zerfall nicht erhalten. Der β-Zerfall wird zu den „schwachen Wechselwirkungen" gerechnet. Zu den „starken Wechselwirkungen" gehören die Kräfte zwischen Protonen und Neutronen (Kernkräfte, Kopplungskonstante $f^2 \Big/ \frac{h}{2\pi} c \approx 1$), ferner die Kräfte zwischen geladenen Teilchen, die auch für die Aussendung elektromagnetischer Strahlung verantwortlich sind (Kopplungskonstante $e^2 \Big/ \frac{h}{2\pi} c = \frac{1}{137} \approx 10^{-2}$). Die beim β-Zerfall wirksamen Kräfte zwischen Neutron, Proton, Elektron und Neutrino bzw. Antineutrino sind dagegen nur sehr schwach (Kopplungskonstante $g^2 \Big/ \frac{h}{2\pi} c \approx 10^{-13}$). Lee und Yang wiesen 1956 als erste darauf hin, daß bei diesen schwachen Wechselwirkungen das Gesetz von der Erhaltung der Parität nicht gilt.

7.4. γ-Zerfall

7.4.1. Diskussion der Spektren

Wie bereits in Abschn. 7.1.3. erläutert, versteht man unter einem γ-Zerfall den Übergang eines Nuklids von einem angeregten Zustand in den Grundzustand (oder in einen tiefer gelegenen angeregten Zustand). Dieser Übergang kann durch Aussendung eines γ-Quants erfolgen, durch Energieübertragung an ein Konversionselektron (innere Konversion) oder gleichzeitige Aussendung eines Elektrons und eines Positrons. Die letztere Möglichkeit ist nur dann gegeben, wenn die Zerfallsenergie größer ist als die Energie, die zur Paarbildung (Erzeugung eines Elektrons und Positrons) erforderlich ist (1,02 MeV); die Paarbildung tritt beim γ-Zerfall verhältnismäßig selten auf.

Im Gegensatz zu den β-Spektren sind die γ-Spektren monoenergetisch; d. h., bei radioaktiven Zerfallsprozessen werden immer nur γ-Quanten bestimmter Energie ausgesandt ($E = h \cdot \nu$). Diese Energie entspricht genau der Energiedifferenz ΔE zwischen dem angeregten Zustand und dem Grundzustand — oder einem tiefer gelegenen angeregten Zustand. Die Messung der γ-Spektren hat deshalb große Bedeutung für die Aufstellung von Energiediagrammen. Dabei ist zu beachten, daß das γ-Spektrum in der Nuklidkarte und in Tabellen nicht bei dem Nuklid aufgeführt wird, das dieses Spektrum aus-

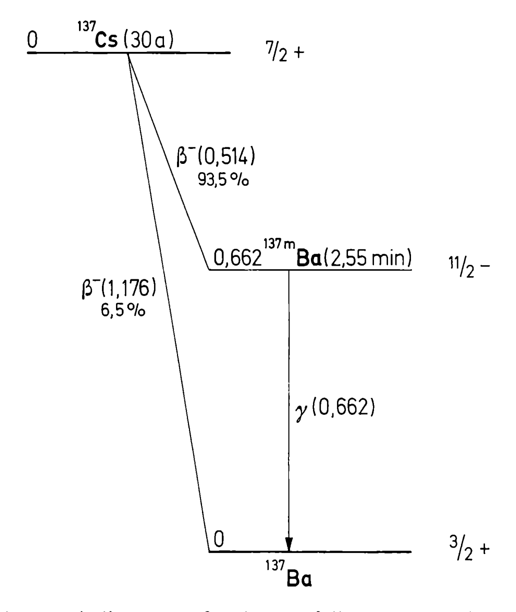


Abb. (7–21) Energiediagramm für den Zerfall des Cs–137 (Energien in MeV).

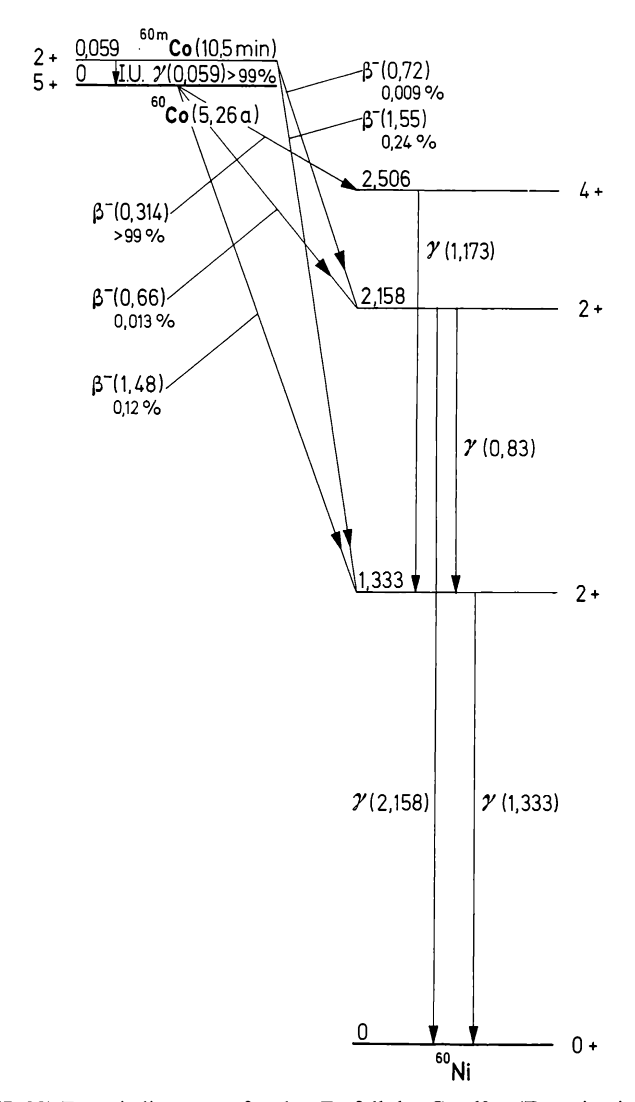


Abb. (7–22) Energiediagramm für den Zerfall des Co–60m (Energien in MeV).

sendet, sondern bei dem Mutternuklid, aus dem der angeregte Zustand durch α- oder β-Umwandlung hervorgeht. Beispiele für γ-Spektren haben wir bereits in Abschnitt 6.4.3. kennengelernt (Abbn. (6–21) und (6–22)); die dazugehörigen Energiediagramme (Zerfallschemata) sind in den Abbn. (7–21) und (7–22) aufgezeichnet.

7.4.2. Theorie des γ-Zerfalls

Die Theorie des γ-Zerfalls basiert auf dem Modell eines elektromagnetischen Multipols. Ein solcher Multipol kann sein elektrisches oder sein magnetisches Moment durch Aussendung elektromagnetischer Strahlung ändern. Man unterscheidet deshalb elektrische Multipolstrahlung (E) und magnetische Multipolstrahlung (M). In beiden Fällen kann sich die Drehimpulsquantenzahl des Kerns um eine oder mehrere Einheiten ändern, wobei das γ-Quant wegen des Impulserhaltungssatzes einen entsprechenden Drehimpuls $L \cdot \frac{h}{2\pi}$ mitnimmt. Im Falle von Photonen ist L eine ganze Zahl ($L = 1, 2, 3...$); $L = 0$ ist ausgeschlossen, weil das γ-Quant mindestens die Spinquantenzahl 1 besitzt. Die vom Multipol ausgesandte Strahlung wird durch die Zahl L charakterisiert; 2^L gibt die Ordnung der Strahlung an ($L = 1$ ist die Strahlung eines Dipols, $L = 2$ die eines Quadrupols, $L = 3$ die eines Oktupols usw.). Die elektrischen und magnetischen Multipolstrahlungen unterscheiden sich hinsichtlich ihrer Parität. Elektrische Multipolstrahlung besitzt gerade Parität, wenn L gerade ist, magnetische Multipolstrahlung gerade Parität, wenn L ungerade ist. Da es sich bei der Aussendung elektromagnetischer Strahlung um eine starke Wechselwirkung handelt, gilt der Satz von der Erhaltung der Parität; d. h., die Parität des gesamten Systems, bestehend aus dem Kern und dem γ-Quant, bleibt erhalten.

Die Wahrscheinlichkeit für den γ-Zerfall ist gleich der Summe der Einzelwahrscheinlichkeiten für die Aussendung der verschiedenen Arten von γ-Quanten. Diese Einzelwahrscheinlichkeiten nehmen aber mit steigenden L-Werten sehr stark ab (um etwa den Faktor 10^3 bis 10^9 beim Übergang von L zu $L + 1$); außerdem ist für einen bestimmten Multipol die Wahrscheinlichkeit der elektrischen Multipolstrahlung um etwa zwei Größenordnungen höher als die der magnetischen Multipolstrahlung. Dies hat zur Folge, daß aus der Reihe der Einzelwahrscheinlichkeiten die erste überwiegt, die nicht durch die Auswahlregeln ausgeschlossen ist.

Legt man das Schalenmodell des Atomkerns zugrunde, so folgt nach WEISSKOPF für die Zerfallskonstanten λ bei Aussendung elektrischer Multipolstrahlung:

$$\lambda_E = 2{,}4\, S\,(r_0 A^{1/3})^{2L} \left(\frac{E}{197}\right)^{2L+1} 10^{21}\ \mathrm{s}^{-1} \tag{7.51}$$

und bei Aussendung magnetischer Multipolstrahlung

$$\lambda_M = 0{,}55\, S A^{-2/3} (r_0 A^{1/3})^{2L} \left(\frac{E}{197}\right)^{2L+1} 10^{21}\ \mathrm{s}^{-1}. \quad (7.52)$$

In diesen Gleichungen bedeuten: $r_0 A^{1/3} = r_K$ den Kernradius in 10^{-13} cm.($r_0 = 1{,}4 \cdot 10^{-13}$ cm; A = Massenzahl), E die Energie der γ-Quanten in MeV und

$$S = \frac{2(L+1)}{L\,[1 \cdot 3 \cdot 5 \cdot \ldots\ldots (2L+1)]^2} \left(\frac{3}{L+3}\right)^2. \quad (7.53)$$

Für $L = 1$ ist $S = 0{,}25$
$L = 2$ $S = 4{,}8 \cdot 10^{-3}$
$L = 3$ $S = 6{,}25 \cdot 10^{-5}$
$L = 4$ $S = 5{,}3 \cdot 10^{-7}$

Die nach diesen Gleichungen für die Massenzahl $A = 100$ berechneten Halbwertzeiten sind in Tab. 7.5. angegeben. Da in dem Modell nicht

Tabelle 7.5.
Berechnete Werte für die Halbwertzeit des γ-Zerfalls nach dem Modell der Multipolstrahlung

Art der Strahlung	Änderung der Quantenzahl L für den Bahndrehimpuls	Änderung der Parität	Halbwertzeit in s bei einer Energie der Strahlung von		
			1 MeV	0,2 MeV	0,05 MeV
E_1	1	ja	$2 \cdot 10^{-16}$	$3 \cdot 10^{-14}$	$2 \cdot 10^{-12}$
M_1	1	nein	$2 \cdot 10^{-14}$	$2 \cdot 10^{-12}$	$2 \cdot 10^{-10}$
E_2	2	nein	$1 \cdot 10^{-11}$	$3 \cdot 10^{-8}$	$3 \cdot 10^{-5}$
M_2	2	ja	$9 \cdot 10^{-10}$	$3 \cdot 10^{-6}$	$3 \cdot 10^{-3}$
E_3	3	ja	$7 \cdot 10^{-7}$	$6 \cdot 10^{-2}$	$9 \cdot 10^{2}$
M_3	3	nein	$7 \cdot 10^{-5}$	5	$8 \cdot 10^{4}$
E_4	4	nein	$8 \cdot 10^{-2}$	$2 \cdot 10^{5}$	$4 \cdot 10^{10}$
M_4	4	ja	7	$1 \cdot 10^{7}$	$4 \cdot 10^{12}$

alle Eigenschaften des Atomkerns berücksichtigt sind, können die Werte nur als Näherungswerte angesehen werden.

Die Auswahlregeln für den γ-Zerfall lassen sich in der folgenden Gleichung zusammenfassen:

$$I_a + I_e \geq L \geq |I_a - I_e|. \tag{7.54}$$

I_a ist der Kernspin im Anfangszustand, I_e der Kernspin im Endzustand. Darüber hinaus gilt der Satz von der Erhaltung der Parität. Er besagt, daß elektrische Multipole mit geraden L-Werten und magnetische Multipole mit ungeraden L-Werten erlaubt sind, wenn Anfangs- und Endzustand gleiche Parität besitzen; andererseits sind nur elektrische Multipole mit ungeraden L-Werten und magnetische Multipole mit geraden L-Werten erlaubt, wenn Anfangs- und Endzustand verschiedene Parität besitzen. Da Photonen die Spinquantenzahl 1 haben, können Übergänge $I_a = 0 \rightarrow I_e = 0$ nicht durch Aussendung von einem γ-Quant stattfinden. Wenn sich bei diesem Übergang die Parität nicht ändert, kann an Stelle eines γ-Quants ein Konversionselektron ausgesandt werden (z. B. bei Ge–72) oder, wenn die Anregungsenergie ΔE genügend hoch ist ($\Delta E > 1{,}02$ MeV),ein Elektron und ein Positron (z. B. bei Po–214).

Die auf Grund dieser Auswahlregeln nach den Gln. (7.51) und (7.52) berechneten Werte stimmen im allgemeinen hinsichtlich der Größenordnung mit den beobachteten Werten überein; Abweichungen um den Faktor 10^2 oder mehr sind selten. Dies ist gleichzeitig eine Stütze für das Schalenmodell des Atomkerns, das bei der Berechnung der Gln. (7.51) und (7.52) zu Grunde gelegt ist. Nach dem Schalenmodell sind bei den Nukliden kurz vor Erreichen der magischen Zahlen Z bzw. N = 50, 82 und 126 angeregte Energiezustände mit niedrigen Anregungsenergien zu erwarten, die sich in ihrem Kernspin sehr stark vom Grundzustand unterscheiden und infolgedessen sehr hohe Halbwertzeiten für den γ-Zerfall zeigen sollten. Tatsächlich wurden in diesen Bereichen die „Inseln der Kernisomerie“ gefunden, d. h. Nuklide mit meßbaren Halbwertzeiten für den γ-Zerfall.

7.4.3. Isomere Umwandlung

Der erste Fall der Kernisomerie wurde 1921 von Hahn aufgefunden, der auf chemischem Wege nachwies, daß das ^{234}Pa in zwei isomeren Zuständen auftritt, die als UX_2 und UZ bezeichnet wurden. Das Zerfallschema ist in Abb. (7–23) aufgezeichnet. Beide Isomere entstehen aus ^{234}Th (UX_1). UX_2 ($t_{1/2} = 1{,}17$ min) befindet sich im höheren Anregungszustand (Pa–234m) und geht zu annähernd 100% direkt in ^{234}U (U II) über. UZ hat eine längere Halbwertzeit ($t_{1/2} = 6{,}75$ h).

Erst die Herstellung „künstlicher“ Radionuklide durch Kernreak-

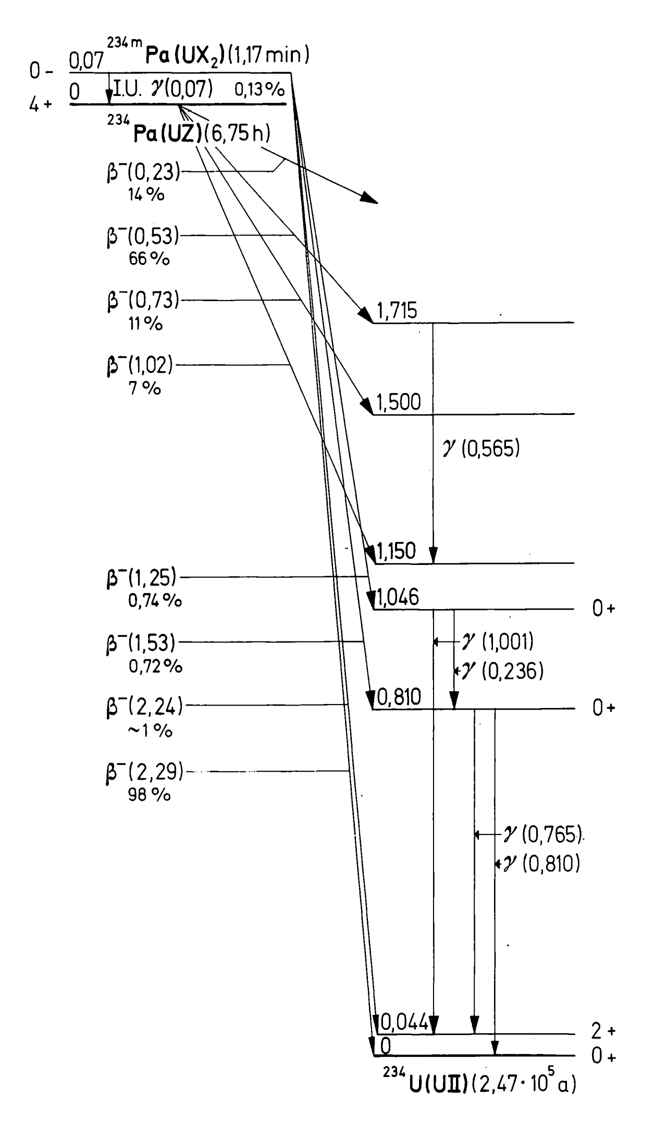


Abb. (7–23) Energiediagramm für den Zerfall des Pa–234m (Energien in MeV).

tionen führte zur Entdeckung vieler weiterer Beispiele der Kernisomerie. So wurden beim Br–80 zwei isomere Zustände gefunden, die ebenfalls auf chemischem Wege getrennt werden konnten; das Zerfallsschema ist in Abb. (7–24) wiedergegeben. Zwei weitere Beispiele sind in Abb. (7–25) enthalten. Aus der Änderung des Kernspins und der Parität können mit Hilfe der in Gl. (7.54) zusammengefaßten Auswahlregeln und der Gln. (7.51) bzw. (7.52) theoretische Werte für die Zerfallskonstante berechnet werden.

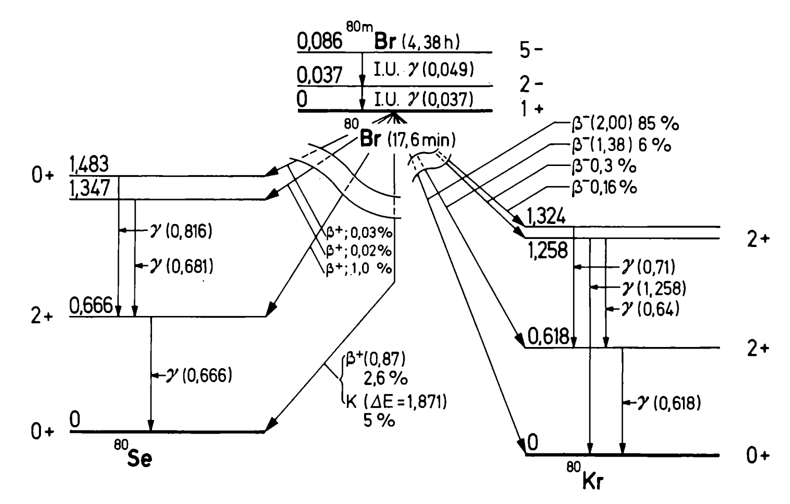


Abb. (7–24) Energiediagramm für den Zerfall des Br–80m (Energien in MeV).

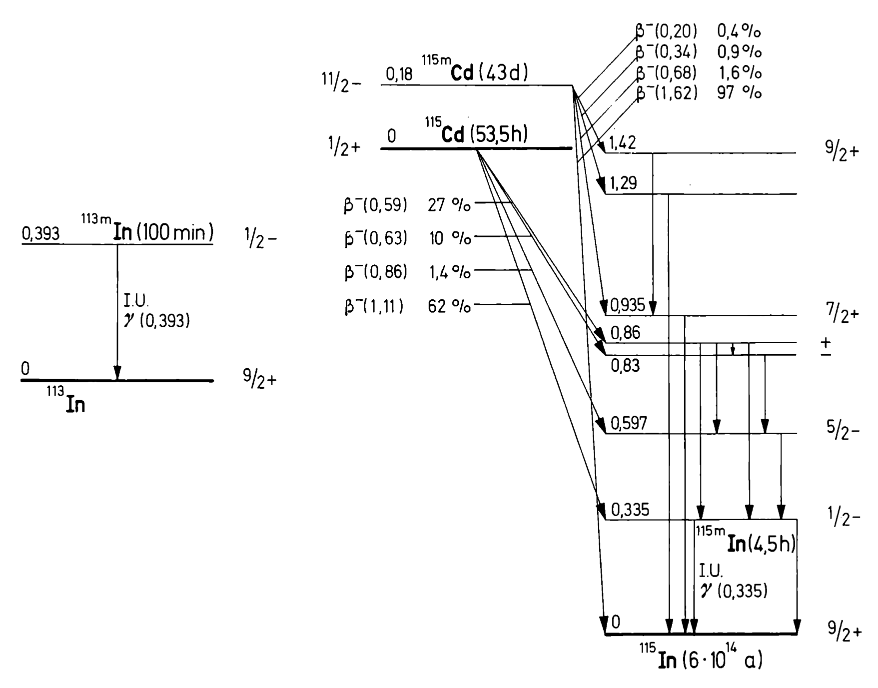


Abb. (7–25) Energiediagramm für den Zerfall von a) In–113m b) Cd–115m bzw. Cd–115 (Energien in MeV).

Insgesamt sind heute etwa 250 Fälle von Kernisomerie bekannt — d. h. von Nukliden, bei denen die Halbwertzeit des γ-Zerfalls meßbar ist ($t_{1/2} = 10^{-10}$ s bis zu vielen Jahren). Die Kernisomerie wurde erst-

mals von WEIZSÄCKER 1936 auf die relativ große Änderung des Kernspins beim Übergang vom angeregten Zustand in den Grundzustand zurückgeführt. Während die Mehrzahl der γ-Übergänge unmeßbar rasch abläuft — d. h. mit Halbwertzeiten $< 10^{-11}$ s — ist bei größeren Unterschieden im Kernspin mit meßbaren Halbwertzeiten zu rechnen. Wie Tab. 7.5. zeigt, ist dabei ein kontinuierlicher Übergang zu erwarten: je größer die Änderung des Kernspins, desto größer die Halbwertzeit. In Tab. 7.6. sind einige Beispiele von isomeren Umwandlungen zusammengestellt. Die Halbwertzeiten entsprechen annähernd den nach den Gln. (7.51) und (7.52) berechneten Werten. Die meisten langlebigen isomeren Zustände senden γ-Strahlung vom Typus M 4 aus.

Tabelle 7.6.
Beispiele für isomere Umwandlungen (I.U.)

Radionuklid	Halbwertzeit	Energie der I.U. in MeV
^{24m}Na	20 ms	0,472
^{34m}Cl	32 min	0,145
^{38m}Cl	0,74 s	0,66
^{44m}Sc	2,44 d	0,271
^{46m}Sc	20 s	0,142
^{60m}Co	10,5 min	0,059
^{79m}Se	3,9 min	0,096
^{81m}Se	57 min	0,103
^{80m}Br	4,38 h	0,049; 0,037
^{87m}Y	14 h	0,381
^{90m}Zr	0,81 s	2,32
^{109m}Ag	40 s	0,088
^{110m}Ag	253 d	0,116
^{111m}Cd	48,6 min	0,150; 0,247
^{113m}In	1,66 h	0,393
^{133m}Xe	2,26 d	0,233
^{135m}Ba	28,7 h	0,268
^{137m}Ba	2,55 min	0,662
$^{192m_1}Ir$	1,4 min	0,058
$^{192m_2}Ir$	> 5 a	0,161
^{199m}Hg	43 min	0,375; 0,158
^{197m}Tl	0,54 s	0,222; 0,385
^{207m}Pb	0,8 s	1,06; 0,57
^{234m}Pa	1,17 min	0,021

Die Untersuchung der isomeren Zustände hat in den vergangenen Jahren große Bedeutung für die Vorstellungen vom Aufbau der Atomkerne gewonnen und wichtige Beiträge für das Kollektiv-Modell (vgl. Abschn. 2.10.) geliefert.

7.4.4. Innere Konversion

Wie bereits erwähnt (Abschn. 7.1.3.), kann ein Nuklid, das sich in einem angeregten Zustand befindet, seine Anregungsenergie auch an ein Elektron der Atomhülle abgeben (innere Konversion). Die Gesamtwahrscheinlichkeit für den Übergang eines Nuklids in den Grundzustand (oder in einen tiefer gelegenen angeregten Zustand) ist somit gegeben durch

$$\lambda = \lambda_\gamma + \lambda_e, \tag{7.55}$$

wenn λ_γ die partielle Zerfallskonstante für die Aussendung von γ-Quanten und λ_e die partielle Zerfallskonstante für die Aussendung von Konversionselektronen ist. Der Konversionskoeffizient α ist gleich dem Verhältnis dieser beiden Zerfallskonstanten (vgl. Abschn. 7.1.3.):

$$\alpha = \frac{\lambda_e}{\lambda_\gamma}. \tag{7.56}$$

Die partiellen Konversionskoeffizienten für die innere Konversion von Elektronen der K-Schale, L-Schale usw. sind

$$\alpha_K = \frac{\lambda_{e(K)}}{\lambda_\gamma}, \; \alpha_L = \frac{\lambda_{e(L)}}{\lambda_\gamma} \text{ usw.} \tag{7.57}$$

Der Gesamtkonversionskoeffizient beträgt:

$$\alpha = \alpha_K + \alpha_L + \dots. \tag{7.58}$$

Die Elektronen, die bei der inneren Konversion auftreten, zeigen ein Linienspektrum (vgl. Abb. (7–26)) — im Gegensatz zum β-Zerfall. Die Energie E_e der Elektronen ist gleich der Zerfallsenergie ΔE, abzüglich der Bindungsenergie E_K bzw. E_L der Elektronen:

$$E_{e(K)} = \Delta E - E_K \quad \text{bzw.} \quad E_{e(L)} = \Delta E - E_L. \tag{7.59}$$

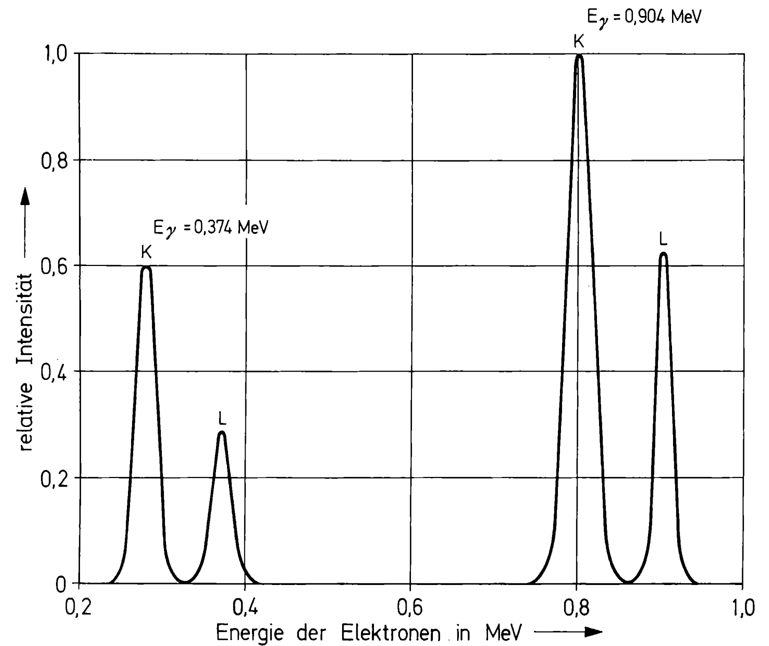


Abb. (7–26) Linienspektrum von Konversionselektronen (Pb–204m_2).

Die Unterschiede der Elektronenenergien, z. B.

$$E_{e(L)} - E_{e(K)} = E_K - E_L, \tag{7.60}$$

sind charakteristisch für das betreffende Element (Ordnungszahl Z) und können deshalb zur Identifizierung dienen.

Im Anschluß an die Aussendung eines Konversionselektrons wird charakteristische Röntgenstrahlung emittiert (ebenso wie beim Elektroneneinfang), wobei die vorhandene Lücke ebenfalls meist durch ein Elektron aus der nächst höheren Schale aufgefüllt wird (z. B. K_α-Strahlung nach Aussendung eines Konversionselektrons aus der K-Schale). Auch im Anschluß an die innere Konversion können durch inneren Photoeffekt Auger-Elektronen entstehen.

Bei der Berechnung der Konversionskoeffizienten gehen die Amplituden der Wellenfunktionen der Elektronen in unmittelbarer Nähe des Kerns ein. Die Konversionskoeffizienten steigen mit der Ordnungszahl und der Änderung ΔI des Kernspins beim Übergang vom angeregten Zustand in den Grundzustand (bzw. einen tiefer gelegenen angeregten Zustand) an und werden mit zunehmender Energiedifferenz kleiner. In Tab. 7.7. sind einige Werte angegeben, die durch Rechnung erhalten wurden.

Die experimentelle Bestimmung der Konversionskoeffizienten ist schwierig, weil die genauen Zählausbeuten für die Konversionselektronen und die γ-Quanten bekannt sein müssen. Einfacher ist die Bestimmung des Verhältnisses α_K/α_L aus den relativen Intensitäten, z. B. in einem Elektronenspektrograph. Bei Kenntnis dieses Verhältnisses sind Aussagen über die Ordnung des Multipols und damit über ΔI und

Tabelle 7.7.
Konversionskoeffizienten für die K- und L-Schale

Z	Übergangstyp	$E_\gamma = 0{,}07665$ MeV		$E_\gamma = 0{,}551$ MeV	
		α_K	α_L	α_K	α_L
25	E_1	$7{,}76 \cdot 10^{-2}$	$6{,}81 \cdot 10^{-3}$	$2{,}98 \cdot 10^{-4}$	$2{,}57 \cdot 10^{-5}$
	M_1	$5{,}52 \cdot 10^{-2}$	$4{,}98 \cdot 10^{-3}$	$5{,}04 \cdot 10^{-4}$	$4{,}38 \cdot 10^{-5}$
	E_2	$1{,}11$	$1{,}12 \cdot 10^{-1}$	$1{,}01 \cdot 10^{-3}$	$8{,}87 \cdot 10^{-5}$
	M_2	$7{,}18 \cdot 10^{-1}$	$7{,}45 \cdot 10^{-2}$	$1{,}58 \cdot 10^{-3}$	$1{,}39 \cdot 10^{-4}$
	E_3	$13{,}1$	$1{,}88$	$3{,}04 \cdot 10^{-3}$	$2{,}76 \cdot 10^{-4}$
	M_3	$8{,}90$	$1{,}15$	$4{,}66 \cdot 10^{-3}$	$4{,}26 \cdot 10^{-4}$
	E_4	$1{,}48 \cdot 10^{2}$	$34{,}1$	$8{,}75 \cdot 10^{-3}$	$8{,}29 \cdot 10^{-4}$
	M_4	$1{,}11 \cdot 10^{2}$	$18{,}6$	$1{,}36 \cdot 10^{-2}$	$1{,}29 \cdot 10^{-3}$
70	E_1	$5{,}54 \cdot 10^{-1}$	$9{,}35 \cdot 10^{-2}$	$4{,}91 \cdot 10^{-3}$	$6{,}94 \cdot 10^{-4}$
	M_1	$6{,}32$	$8{,}75 \cdot 10^{-1}$	$3{,}37 \cdot 10^{-2}$	$4{,}66 \cdot 10^{-3}$
	E_2	$1{,}52$	$5{,}81$	$1{,}33 \cdot 10^{-2}$	$2{,}79 \cdot 10^{-3}$
	M_2	$59{,}9$	$21{,}7$	$1{,}00 \cdot 10^{-1}$	$1{,}81 \cdot 10^{-2}$
	E_3	$2{,}53$	$2{,}11 \cdot 10^{2}$	$3{,}38 \cdot 10^{-2}$	$1{,}23 \cdot 10^{-2}$
	M_3	$2{,}02 \cdot 10^{2}$	$4{,}94 \cdot 10^{2}$	$2{,}52 \cdot 10^{-1}$	$5{,}78 \cdot 10^{-2}$
	E_4	$3{,}50$	$4{,}45 \cdot 10^{3}$	$9{,}37 \cdot 10^{-2}$	$5{,}13 \cdot 10^{-2}$
	M_4	$4{,}65 \cdot 10^{2}$	$9{,}99 \cdot 10^{3}$	$6{,}22 \cdot 10^{-1}$	$1{,}87 \cdot 10^{-1}$

Werte aus:
M. E. Rose: International Conversion Coefficients. North Holland Publ. Comp., Amsterdam 1958.

die Änderung der Parität möglich. Im Hinblick darauf sind auch die Messungen der Quotienten $\alpha_{L\,I}/\alpha_{L\,II}$, $\alpha_{L\,I}/\alpha_{L\,III}$, α_L/α_M usw. von großem Interesse. (Die Indizes L_I, L_{II}, L_{III} entsprechen den $2s_{1/2}$ bzw. $2p_{1/2}$ bzw. $2p_{3/2}$ Elektronen). Bei schweren Nukliden sind die Zerfallsenergien oft kleiner als die Bindungsenergie der Elektronen der K-Schale, sodaß nur Konversionselektronen aus der L-Schale und höheren Schalen beobachtet werden.

7.5. Spontanspaltung

Der Vergleich der für die Spontanspaltung gefundenen Halbwertzeiten (Tab. 7.2.) zeigt, daß diese mit wachsender Ordnungszahl sehr stark abnehmen. Nach dem Modell von der Spaltung eines Flüssigkeitströpfchens sollte die Spontanspaltung von der Größe Z^2/A abhängen. In Abb. (7–27) ist der Logarithmus der Halbwertzeit für die Spontanspaltung als Funktion von Z^2/A für g, g-Kerne aufgezeichnet. Daraus wird deutlich, daß ein gegebenes Element bei einer mittleren Massenzahl am stabilsten gegen Spontanspaltung ist (z. B. Pu–240); bei höheren oder niedrigeren Massenzahlen fällt die Halbwertzeit für die Spontanspaltung ab (z. B. Pu–244 oder Pu–236). Für g,g-Kerne zeichnet sich somit eine gewisse Gesetzmäßigkeit ab; andere Kerne

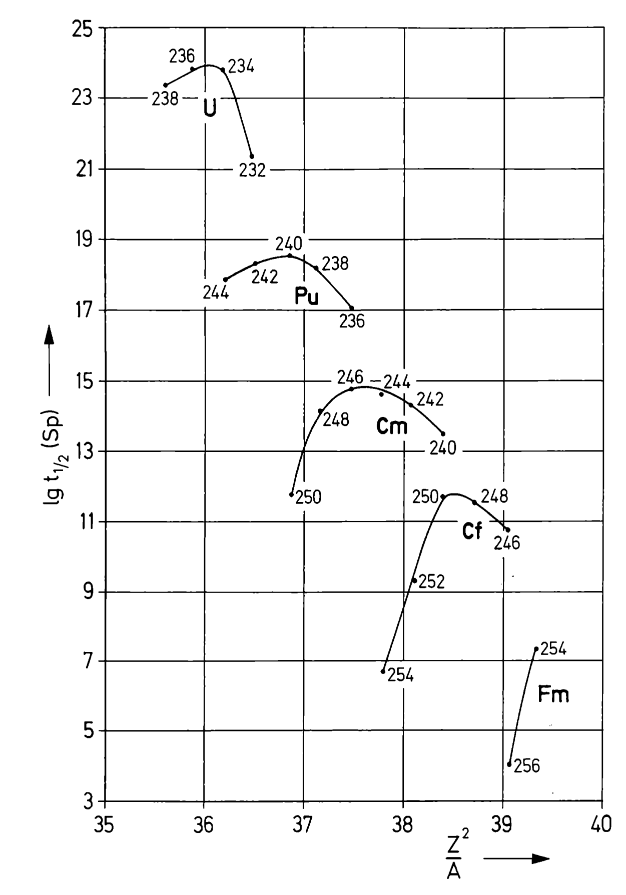


Abb. (7–27) Logarithmus der Halbwertzeit für die Spontanspaltung (in s) als Funktion von Z^2/A für g, g-Kerne.

zeigen demgegenüber sehr viel längere Halbwertzeiten für die Spontanspaltung.

Die Spontanspaltung kann formal in verschiedene Abschnitte aufgeteilt werden (Abb.(7–28)):

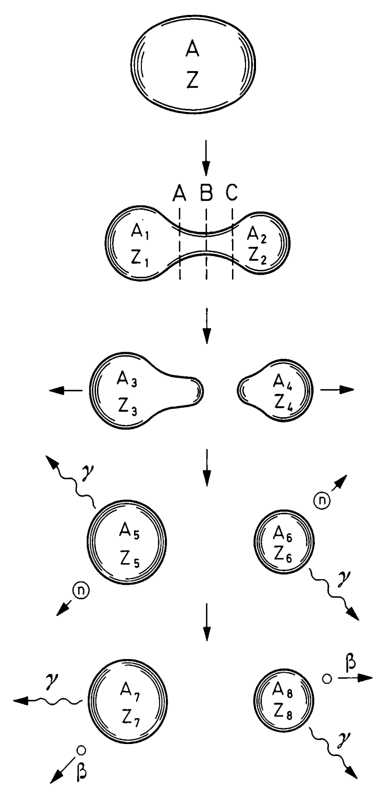


Abb. (7–28) Schema der Spontanspaltung.

a) Der Kern mit der Massenzahl A und der Ordnungszahl Z schnürt sich ein. Dabei wird angenommen, daß zumindest in einem Teil eine magische Zahl von Protonen oder Neutronen bevorzugt wird.
b) Der Kern trennt sich in 2 Spaltstücke. Findet diese Trennung an der Stelle A statt, so entstehen zwei Spaltstücke von etwa gleicher Masse (symmetrische Spaltung), wobei das linke (annähernd kugelförmige) Bruchstück nur eine geringe Anregungsenergie besitzt, das rechte Bruchstück jedoch eine hohe Anregungsenergie. Am wahrscheinlichsten ist eine Trennung an der Stelle B, wobei zwei asymmetrische Spaltstücke etwa gleicher Anregungsenergie entstehen. Eine Spaltung an der Stelle C schließlich bedeutet die Bildung

von zwei Spaltstücken sehr verschiedener Masse, wobei das linke Spaltstück die größere Anregungsenergie besitzt.

c) Die Spaltstücke geben den Großteil ihrer Anregungsenergie durch „Verdampfen" von Neutronen ab. Gelegentlich werden auch geladene Teilchen emittiert. Die restliche Anregungsenergie wird schließlich in Form von Photonen abgegeben. Während die Nukleonen vor Beginn der Teilung durch die Kernkräfte zusammengehalten wurden, macht sich nun die Coulombsche Abstoßung der beiden Bruchstücke bemerkbar, die eine sehr viel größere Reichweite besitzt als die Kernkräfte. Die Coulombsche Abstoßung bewirkt, daß sich die Spaltstücke mit hoher kinetischer Energie voneinander entfernen.

d) Die Spaltstücke, die noch einen hohen Neutronenüberschuß besitzen, wandeln sich durch eine Kette von aufeinanderfolgenden β^--Zerfällen um. Während die vorausgehenden Prozesse nicht im einzelnen verfolgt werden können, weil sie sehr rasch ablaufen ($< 10^{-15}$ s), kann der β^--Zerfall der Spaltstücke im allgemeinen gemessen werden.

Abb. (7–29) gibt eine Übersicht über die Ausbeute bei der Spontanspaltung von Cm–242 als Funktion der Massenzahl. Dabei tritt deutlich hervor, daß die Spaltung asymmetrisch verläuft; gleich schwere Bruchstücke treten nur selten auf.

Die theoretische Behandlung der Spontanspaltung kann ähnlich erfolgen wie die des α-Zerfalls. Auch in diesem Falle ist eine Potentialschwelle vorhanden, die durchdrungen werden muß. Die Wahrscheinlichkeit der Durchdringung — d. h. die „Durchlässigkeit" der Potentialschwelle — ist gegeben durch eine der Gl. (7.25) entsprechende Beziehung. Die Auswertung liefert jedoch noch keine mit dem Experiment vergleichbaren Ergebnisse.

Extrapoliert man die in Abb. (7–27) aufgezeichneten Daten für größere Z^2/A-Werte, so folgt, daß Halbwertzeiten für die Spontanspaltung von ungefähr 10^{-20} s bei $Z^2/A \approx 50$ erreicht werden. Diese Zeit ist als ein Grenzwert anzusehen, weil sie etwa einer Kernschwingung entspricht. Dann ist bei der Spaltung keine Potentialschwelle mehr zu überwinden bzw. zu durchdringen; der Kern spaltet sich sofort. Das bedeutet aber, daß Elemente mit Ordnungszahlen $Z > 130$ nicht mehr existenzfähig sein sollten. Die Theorie liefert Grenzwerte für Z^2/A, die zwischen etwa 44 und 47 liegen. Es fragt sich, inwieweit diese Extrapolationen zulässig sind, insbesondere in der Nähe von magischen Zahlen.

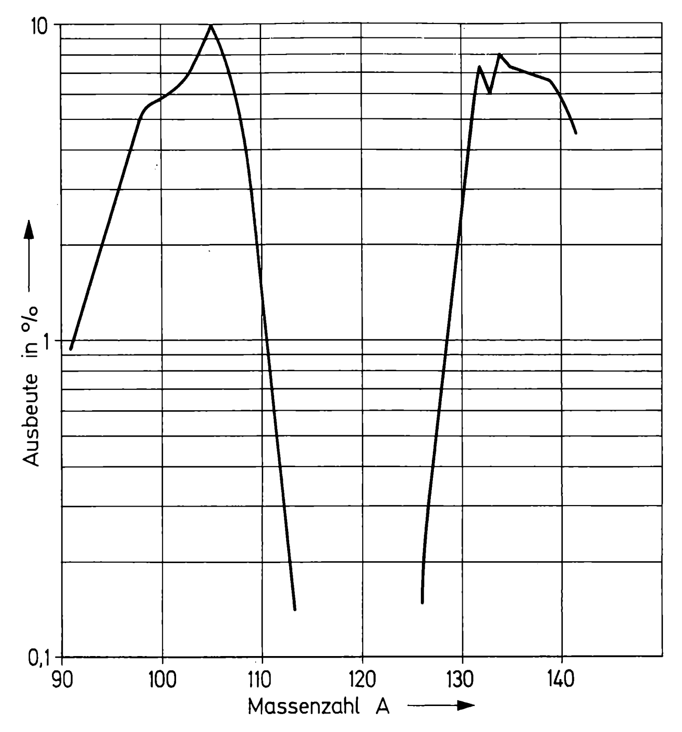


Abb. (7–29) Ausbeute als Funktion der Massenzahl bei der Spontanspaltung des Cm–242. Nach E. P. STEINBERG u. L. E. GLENDENIN: Physic. Rev. **95** (1954) 431.

Literatur zu Kapitel 7

1. I. KAPLAN: Nuclear Physics, 2. Aufl., Addison-Wesley Publ. Comp., Reading 1964.
2. R. D. EVANS: The Atomic Nucleus. McGraw-Hill Book Comp., New York 1955.
3. G. FRIEDLANDER, J. W. KENNEDY, J. M. MILLER: Nuclear and Radiochemistry, 2. Aufl., John Wiley and Sons, New York 1964.
4. G. C. HANNA: Alpha Radioactivity. In: Experimental Nuclear Physics. Bd. III. Hrsg. E. SEGRÈ. John Wiley and Sons, New York 1959, S. 54.
5. K. SIEGBAHN: Alpha-, Beta- and Gamma-Ray Spectroscopy, 2 Bde., North-Holland Publishing Comp. Amsterdam 1966.
6. FAY AJZENBERG-SELOVE: Nuclear Spectroscopy. Academic Press, New York 1960.
7. E. J. KONOPINSKI, L. M. LANGER: The Experimental Clarification of the Theory of β Decay. Annu. Rev. nuclear Sci. **2** (1953) 261.
8. E. J. KONOPINSKI: The Experimental Clarification of the Laws of β Radioactivity. Annu. Rev. nuclear Sci. **9** (1959) 99.
9. V. I. GOLDANSKII: On Neutron-Deficient Isotopes of Light Nuclei and the Phenomena of Proton and Two-Proton Radioactivity. Nuclear Physics **19** (1960) 482.
10. V. I. GOLDANSKII: Two-Proton Radioactivity. Nuclear Physics **27** (1961) 648.
11. M. GOLDHABER, R. D. HILL: Nuclear Isomerism and Shell Structur. Rev. mod. Physics **24** (1952) 179.

12. M. Goldhaber, A. W. Sunyar: Classification of Nuclear Isomers. Physic. Rev. **83** (1951) 906.
13. I. Halpern: Nuclear Fission. Annu. Rev. nuclear Sci. **9** (1959) 245.
14. Table of Isotopes, Hrsg. C. M. Lederer, J. M. Hollander u. I. Perlman, John Wiley and Sons, New York, 6. Auflage 1967.
15. National Academy of Sciences — National Research Council, Nuclear Data Sheets. Washington 1958 - 1963.
16. C. D. Coryell: Beta-Decay Energetics. Annu. Rev. nuclear Sci. **2** (1953) 305.

Übungen zu Kapitel 7

1. Ist bei folgenden Radionukliden β^+-Zerfall möglich: Be–7, Ar–37, Ca–41, V–50, Cr–51, Mn–54, Fe–55, Ni–59?

2. Die Energie der von Nd–144 ausgesandten α-Teilchen beträgt 1,83 MeV. Wie groß ist die Zerfallsenergie?

3. Co–60 zerfällt unter Aussendung von β^--Strahlung (0,31 MeV) und γ-Strahlung (1,17 MeV und 1,33 MeV). Man zeichne das Zerfallsschema auf. Wie groß ist die durchschnittliche Anfangsgeschwindigkeit der β^--Teilchen im Verhältnis zur Lichtgeschwindigkeit? Wie groß sind die Wellenlängen der γ-Strahlung?

4. Wie groß ist der ft-Wert für die β^--Umwandlung folgender Radionuklide: H–3, C–14, P–32 und S–35? Um welche Art von Umwandlungen handelt es sich?

5. Welche Näherungswerte berechnet man für das Verhältnis von Elektroneneinfang zu β^+-Strahlung für folgende Radionuklide: Co–58, Cu–64, Cs–130 und Sm–143?

6. Man berechne Näherungswerte für die Zerfallskonstante der isomeren Umwandlung von Br–80 m, Rb–81 m und Ce–139 m. Die Übergänge sind:

$$\text{Br–80 m: } 5- \xrightarrow{0{,}049\ \text{MeV}} 2- \xrightarrow{0{,}037\ \text{MeV}} 1+\ (100\%)$$

$$\text{Rb–81 m: } 9/2+ \xrightarrow{0{,}085\ \text{MeV}} 3/2-\ (50\%)$$

$$\text{Ce–139 m: } 11/2- \xrightarrow{0{,}746\ \text{MeV}} 3/2+$$

7. Cf–252 zeigt neben dem α-Zerfall auch Spontanspaltung; 3,1% aller Zerfälle sind Spontanspaltungen. Die Halbwertzeit des Cf–252 ist 2,65 a. Wie groß sind die partiellen Zerfallskonstanten für die Spontanspaltung und den α-Zerfall?

8. Kernreaktionen

8.1. Kernreaktionen als binukleare Reaktionen

Die Untersuchung von Kernreaktionen und die Gewinnung von Radionukliden sind wichtige Arbeitsgebiete der Kernchemie. Jeder Kernchemiker muß deshalb die Grundlagen für die Herstellung der gewünschten radioaktiven oder stabilen Nuklide durch Kernreaktionen in einem Reaktor oder in einem Beschleuniger kennen. Die erforderlichen Überlegungen und Berechnungen muß er selbst ausführen.

Der einfachste Fall einer Kernreaktion ist der radioaktive Zerfall, der in Kapitel 5 behandelt wurde. Dieser erfolgt spontan mit einer bestimmten Wahrscheinlichkeit, die durch die Zerfallskonstante λ gegeben ist. Die allgemeine Reaktionsgleichung für den radioaktiven Zerfall lautet (vgl. Gl. (5.1))

$$\mathrm{A} \longrightarrow \mathrm{B} + \mathrm{x} + \Delta E. \tag{8.1}$$

Diese Gleichung besagt: Ein Nuklid A zerfällt in ein Nuklid B und ein Teilchen x; dabei wird die Energie ΔE frei, die nach der Einsteinschen Beziehung $\Delta E = \Delta M \cdot c^2$ aus der Differenz der Nuklidmassen ΔM berechnet werden kann. Der radioaktive Zerfall ist eine mononukleare Reaktion (Reaktion 1. Ordnung).

Die erste künstliche Kernumwandlung wurde 1919 von RUTHERFORD beschrieben. Er verwendete die α-Strahlen des Po–214 (RaC′) als Geschosse und konnte die Umwandlung von N–14 in O–17 durch die Bildung von Protonen nachweisen; die Reaktion wurde in der Nebelkammer beobachtet. In sehr viel größerem Umfange konnten künstliche Kernumwandlungen durchgeführt werden, nachdem CHADWICK im Jahre 1932 das Neutron entdeckt hatte; das Neutron kann nämlich sehr viel leichter in einen Atomkern eindringen als ein geladenes Teilchen — z. B. ein Proton oder ein α-Teilchen —, weil es durch den positiv geladenen Atomkern nicht abgestoßen wird. Deshalb sind die Aus-

beuten von Kernreaktionen bei Verwendung von Neutronen verhältnismäßig hoch.

Die allgemeine Formulierung für eine Kernreaktion lautet

$$\mathrm{A} + \mathrm{x} \longrightarrow \mathrm{B} + \mathrm{y} + \Delta E. \qquad (8.2)$$

Diese Gleichung besagt: Ein Nuklid A wird mit einem Strahl von Teilchen bzw. Quanten x beschossen; dabei entsteht ein Nuklid B und ein Teilchen oder ein Quant y. Die Energie ΔE wird frei; ist ΔE negativ, so muß Energie aufgewendet werden. Diese binukleare Reaktion kann ebenso wie eine mononukleare Reaktion im Sinne einer chemischen Reaktionsgleichung geschrieben werden. Dabei müssen die Summen der Massenzahlen und der Ordnungszahlen auf beiden Seiten gleich sein. Die oben erwähnte Kernumwandlung, die von RUTHERFORD beobachtet wurde, lautet in ausführlicher Schreibweise

$$^{14}_{7}\mathrm{N} + ^{4}_{2}\mathrm{He} \longrightarrow ^{17}_{8}\mathrm{O} + ^{1}_{1}\mathrm{H}. \qquad (8.3)$$

Für Kernreaktionen ist auch eine Kurzschreibweise üblich, z. B. an Stelle von Gl. (8.3)

$$^{14}\mathrm{N}\,(\alpha, \mathrm{p})\,^{17}\mathrm{O}, \qquad (8.4)$$

oder statt der allgemeinen Gleichung für (binukleare) Kernreaktionen (8.2)

$$\mathrm{A}\,(\mathrm{x}, \mathrm{y})\,\mathrm{B}. \qquad (8.5)$$

Dabei benutzt man für die Geschosse x oder die entstehenden Teilchen y die Symbole n (Neutron), p (Proton), d (Deuteron), α (Alphateilchen) usw. Die Energie ΔE kann aus der Differenz der Nuklidmassen berechnet werden; nähere Angaben über die Energetik von Kernreaktionen sind im Abschnitt 8.2. enthalten. Außer der Energie bzw. der Masse müssen bei einer Kernreaktion auch der Impuls, der Drehimpuls, die Statistik und die Parität (letztere nur bei „starken“ Wechselwirkungen) erhalten bleiben.

Das Nuklid A, das bei einer Kernreaktion beschossen wird bzw. die Substanz, die das Nuklid A enthält, werden in Form eines „Targets“ vorgelegt. Diese Bezeichnung ist aus dem Angelsächsischen entnom-

men; eine passende deutsche Bezeichnung hat sich noch nicht eingebürgert. Bei der praktischen Durchführung von Kernreaktionen ist zu beachten, ob ein Reinelement oder ein Mischelement vorgelegt wird. Handelt es sich um ein Mischelement — d. h. um mehrere Isotope — so müssen alle Kernreaktionen berücksichtigt werden, die mit den verschiedenen Isotopen ablaufen können. Wenn man nicht ein Element, sondern eine chemische Verbindung vorlegt, so sind alle Kernreaktionen der einzelnen Isotope der in der Verbindung vorhandenen Elemente in Betracht zu ziehen. Der Produktkern B einer Kernreaktion kann stabil oder instabil (radioaktiv) sein. Stabile Produktkerne lassen sich sehr viel schwieriger nachweisen als instabile, die auf Grund ihrer Radioaktivität mit hoher Empfindlichkeit gemessen werden können.

Die wesentlichen Unterschiede zwischen einer chemischen Reaktion und einer Kernreaktion lassen sich in folgenden Punkten zusammenfassen:

a) Bei chemischen Reaktionen wird der Umsatz von wägbaren Stoffmengen betrachtet (z. B. 1 Mol), bei Kernreaktionen dagegen die Umwandlung einzelner Atome. Dementsprechend werden bei chemischen Reaktionen die Reaktionsgrößen (z. B. die Reaktionsenthalpie) im allgemeinen auf 1 Mol bezogen, bei Kernreaktionen aber auf 1 Atom.
b) Bei chemischen Reaktionen bleiben die Nuklide, und damit auch die Atome der einzelnen Elemente, erhalten; bei Kernreaktionen dagegen entstehen andere (isotope oder nicht-isotope) Nuklide.
c) Für chemische Reaktionen gilt das Gesetz von der Erhaltung der Masse; d. h., es wird keine Materie erzeugt oder aufgebraucht ($m = \text{const}$). Bei Kernreaktionen wird Materie in Energie umgewandelt oder umgekehrt; es gilt das Gesetz von der Erhaltung der Summe von Masse und Energie ($mc^2 + E = \text{const}$).
d) Die Energiebeträge, die bei chemischen Reaktionen umgesetzt werden, sind verhältnismäßig klein; sie sind von der gleichen Größenordnung wie die Energie der chemischen Bindungen, die bei der Reaktion gespalten oder geknüpft werden (1 bis einige eV). Die Energiebeträge, die bei Kernreaktionen auftreten, sind im Mittel um etwa 6 Größenordnungen höher; sie entsprechen den Kernkräften, die zwischen den Nukleonen wirksam sind (einige MeV).

Ähnlich wie man in der chemischen Reaktionskinetik als Zwischenstufe einen Übergangszustand (aktivierten Komplex) annimmt, formuliert man auch bei Kernreaktionen in vielen Fällen eine instabile

Zwischenstufe, die nur eine außerordentlich kurze Zeit ($< 10^{-13}$ s) existiert. Diese instabile Zwischenstufe wird als Zwischenkern (angelsächsisch „compound nucleus") bezeichnet. Berücksichtigt man diesen Zwischenkern (Symbol C), so erhält man an Stelle der Gl. (8.2):

$$A + x \longrightarrow (C) \longrightarrow B + y + \Delta E. \tag{8.6}$$

Während die Wahrscheinlichkeit für eine mononukleare Reaktion (d. h. für den radioaktiven Zerfall) durch die Zerfallskonstante λ gegeben ist, sind für den Ablauf einer binuklearen Kernreaktion zwei Wahrscheinlichkeiten maßgebend, und zwar

a) die Wahrscheinlichkeit für den ersten Teilschritt der Reaktion (8.6), d. h. dafür, daß das Teilchen x in das Nuklid A eindringt und den Zwischenkern C bildet, und
b) die Wahrscheinlichkeit für den zweiten Teilschritt der Reaktion (8.6), d. h. dafür, daß der Zwischenkern C in dem gewünschten Sinne unter Bildung des Nuklids B zerfällt.

Zu den Kernreaktionen werden auch die Streuprozesse an Atomkernen gerechnet. Man unterscheidet elastische Streuung

$$A + x \longrightarrow A + x \tag{8.7}$$

und unelastische Streuung

$$A + x \longrightarrow A^* + x. \tag{8.8}$$

Bei der elastischen Streuung wird keine Anregungsenergie übertragen. Bei der unelastischen Streuung dagegen nimmt das Nuklid A einen Energiebetrag ΔE auf, den es für den Übergang in einen angeregten Zustand benötigt. Die Messung der Energiedifferenz ΔE der Teilchen x vor und nach der unelastischen Streuung erlaubt somit die Aufstellung eines Energiediagrammes für das Nuklid A, in dem die angeregten Zustände aufgezeichnet sind. Deshalb ist die Untersuchung von Streuprozessen für die Kernphysik von großer Bedeutung. In der Kernchemie spielen diese Vorgänge nur eine untergeordnete Rolle; sie werden deshalb hier nicht näher behandelt.

8.2. Energetik

Kernreaktionen können ähnlich behandelt werden wie chemische Reaktionen. Der Reaktionsenthalpie ΔH entspricht die Energie ΔE, die bei einer Kernreaktion frei wird und häufig auch als Q-Wert bezeichnet wird. Die Reaktionsenthalpie ΔH wird aus der Differenz der Bildungsenthalpien der Reaktionspartner berechnet, die Energie ΔE einer Kernreaktion aus der Massendifferenz. Bezeichnet man die Massen der an der Kernreaktion (8.2) beteiligten Atomkerne mit m, so folgt aus der Einsteinschen Beziehung

$$\Delta E = (m_A + m_x - m_B - m_y)\, c^2 \tag{8.9}$$

(c ist die Lichtgeschwindigkeit). Führt man die Nuklidmassen M ein,

$$M = m + Z \cdot m_e, \tag{8.10}$$

so ist

$$\Delta E = (M_A + M_x - M_B - M_y)\, c^2. \tag{8.11}$$

Die Elektronenmassen m_e heben sich heraus, weil die Summe der Ordnungszahlen auf beiden Seiten gleich ist. Nur im Falle der β^+-Umwandlung treten bei der Berechnung von ΔE neben den Nuklidmassen noch zwei Elektronenmassen m_e auf (vgl. Abschn. 7.1.2.). Setzt man die Nuklidmassen in ame (atomaren Masseneinheiten) ein, dann ist

$$\Delta E = (M_A + M_x - M_B - M_y) \cdot 931{,}48 \text{ MeV}. \tag{8.12}$$

Wenn bei einer chemischen Reaktion Wärme frei wird (ΔH negativ), spricht man von einer exothermen Reaktion; in Analogie dazu nennt man eine Kernreaktion, bei der Energie frei wird (ΔE positiv), eine exoenergetische oder exoergische Reaktion. Umgekehrt spricht man von einer endothermen Reaktion, wenn bei einer chemischen Reaktion Wärme verbraucht wird (ΔH positiv), und von einer endoenergetischen oder endoergischen Reaktion, wenn bei einer Kernreaktion Energie aufgewendet werden muß (ΔE negativ).

Bei endoergischen Reaktionen muß eine Anregungsenergie aufgebracht werden. Geht man davon aus, daß die Atome A im Target keine kinetische Energie besitzen, so muß die Anregungsenergie von dem Geschoßteilchen x mitgebracht werden. Im allgemeinen ist aber

nicht die gesamte kinetische Energie des Geschoßteilchens x als Anregungsenergie für den Kern A verfügbar; wenn sich ein Zwischenkern bildet, wird ein Teil der kinetischen Energie als Impuls auf ihn übertragen und an die Reaktionsprodukte weitergegeben. Aus dem Impulserhaltungssatz folgt für den Impuls, den der Zwischenkern C erhält:

$$M_C \cdot v_C = M_x \cdot v_x \tag{8.13}$$

und daraus für die Anregungsenergie E^* des Zwischenkerns

$$E^* = E_x\left(1 - \frac{M_x}{M_C}\right) = E_x\left(\frac{M_A}{M_A + M_x}\right). \tag{8.14}$$

Diese muß mindestens ebenso groß sein wie die für die Kernreaktion benötigte Energie $-\Delta E$ (Minuszeichen, weil bei endoergischen Reaktionen ΔE negativ ist):

$$E^* \geq -\Delta E. \tag{8.15}$$

Die Mindestenergie der Teilchen x, die zur Auslösung der Kernreaktion erforderlich ist, beträgt somit

$$E_{x(S)} = -\Delta E\left(1 + \frac{M_x}{M_A}\right). \tag{8.16}$$

Diese Energie wird als Schwellenenergie bezeichnet. Nur solche Teilchen, die mindestens diese Schwellenenergie besitzen, können die Kernreaktion auslösen.

Bei einem Experiment ist die Energie der Geschoßteilchen x im allgemeinen bekannt; die kinetische Energie der Reaktionsprodukte kann bestimmt werden, z. B. für den Produktkern B aus der Reichweite und für das Teilchen y mit Hilfe eines Detektors. Der Produktkern B kann außer seiner kinetischen Energie E_B auch Anregungsenergie E_B^* besitzen. Die Anfangsenergien der Reaktionspartner (Nuklid A und Geschoß x) und die frei werdende Energie ΔE (Q-Wert) verteilen sich auf die Reaktionsprodukte B und y:

$$E_B + E_B^* + E_y = E_A + E_x + \Delta E. \tag{8.17}$$

Geht man wiederum davon aus, daß sich das Nuklid A in Ruhe befindet, so ist

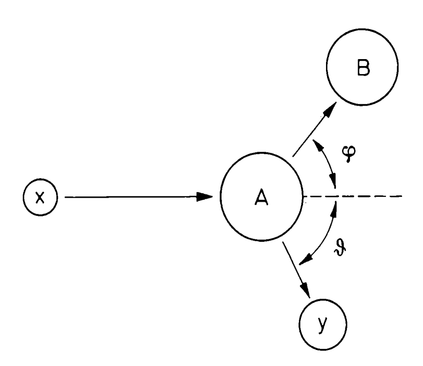


Abb. (8–1) Winkelverteilung bei einer Kernreaktion.

$$E_B + E_B^* + E_y = E_x + \Delta E. \qquad (8.18)$$

Für die Berechnung von ΔE aus E_B und E_y ist die Kenntnis der Winkelabhängigkeit notwendig (Abb. (8–1)). Aus dem Impulserhaltungssatz folgt

$$\Delta E = E_y\left(1 + \frac{M_y}{M_B}\right) - E_x\left(1 - \frac{M_x}{M_B}\right) - \frac{2}{M_B}\sqrt{E_x E_y M_x M_y}\cos\vartheta + E_B^*. \qquad (8.19)$$

Treten die Teilchen y unter dem Winkel $\vartheta = 90°$ zu dem einfallenden Strahl der Teilchen x aus, so ist

$$\Delta E = E_y\left(1 + \frac{M_y}{M_B}\right) - E_x\left(1 - \frac{M_x}{M_B}\right) + E_B^*. \qquad (8.20)$$

Wenn M_x und M_y sehr viel kleiner sind als die Nuklidmassen M_A und M_B, so gilt näherungsweise

$$\Delta E \approx E_y - E_x + E_B^*. \qquad (8.21)$$

Ein Beispiel für eine exoergische Reaktion ist die Erzeugung von Neutronen durch Einwirkung von α-Strahlen auf Beryllium

$$^{9}_{4}\text{Be} + {}^{4}_{2}\text{He} \longrightarrow {}^{12}_{6}\text{C} + {}^{1}_{0}\text{n}. \qquad (8.22)$$

Nach Gl. (8.12) folgt für die Energie (Q-Wert):
$\Delta E = (9{,}012186 + 4{,}002603 - 12{,}000000 - 1{,}008665) \cdot 931{,}48 =$
$= 5{,}70$ MeV. Diese Energie wird nach Gl. (8.17) auf die Reaktionsprodukte aufgeteilt:

$$E_n + E_{C-12} + E^*_{C-12} = E_\alpha + E_{Be-9} + \Delta E. \tag{8.23}$$

Die kinetische Energie E_n, die z. B. das Neutron erhält, ist winkelabhängig (vgl. Abb. (8–1)) und kann aus Gl. (8.19) berechnet werden. Im Gegensatz dazu ist folgende Reaktion endoergisch:

$$^{12}_{6}C + ^{4}_{2}He \longrightarrow ^{15}_{7}N + ^{1}_{1}H. \tag{8.24}$$

Die Energie ΔE (Q-Wert) für diese Reaktion beträgt
$\Delta E = (12{,}000000 + 4{,}002603 - 15{,}000108 - 1{,}007825) \cdot 931{,}48 =$
$= -4{,}96$ MeV und die Schwellenenergie nach Gl. (8.16)

$$E_{x(S)} = 4{,}96\left(1 + \frac{4{,}002603}{12}\right) = 6{,}61 \text{ MeV}.$$

8.3. Geschosse

Als Geschosse für Kernreaktionen haben die Neutronen die größte Bedeutung gewonnen. Das hat zwei Ursachen:

a) Da die Neutronen keine Ladung besitzen, können sie unbehindert von Coulombschen Abstoßungskräften in den Kern eindringen.
b) Neutronen stehen in Kernreaktoren in verhältnismäßig großen Mengen zur Verfügung. Außerdem können Strahlen von monoenergetischen Neutronen in fast allen Energiebereichen (von etwa 10^{-4} bis 10^7 eV) für die Untersuchung von Kernreaktionen eingesetzt werden.

Neutronen sind instabil; sie zerfallen mit einer Halbwertzeit von 12 min:

$$n \longrightarrow p + e^- + \bar{\nu}. \tag{8.25}$$

„Neutronengas" kann also nicht länger aufbewahrt werden. Die Zerfallsenergie beträgt $\Delta E = 0{,}782$ MeV.

Man unterteilt die Neutronen nach ihrer Energie in

thermische Neutronen:	0 — 0,1	eV
langsame Neutronen:	0,1 — 100	eV
mittelschnelle Neutronen:	0,1 — 100	keV
schnelle Neutronen:	0,1 — 10	MeV
ultraschnelle Neutronen:	> 10	MeV

Die kinetische Energie der thermischen Neutronen entspricht dem Bereich normaler Temperaturen (etwa 0 — 10^3 °K).

Bei Energien von der Größenordnung 1 eV spricht man auch von Resonanzneutronen, weil viele Atomkerne in diesem Bereich Absorptionsmaxima für Neutronen zeigen. Langsame bzw. thermische Neutronen entstehen aus schnellen Neutronen durch elastische Zusammenstöße. Dabei verlieren die Neutronen einen Teil ihrer Energie. Das Verhältnis der Energie E' nach einem Zusammenstoß zur Energie E vor diesem Zusammenstoß ist winkelabhängig (vgl. Abb. (8–2)):

$$\frac{E'}{E} = \frac{m_A^2 + m_n^2 + 2 m_A m_n \cos\varphi}{(m_A + m_n)^2}; \tag{8.26}$$

m_A ist die Masse des getroffenen Kerns und m_n die Masse des Neutrons. Bei einem zentralen Zusammenstoß ($\varphi = 180°$) wird die meiste Energie übertragen. Im Mittel verlieren die Neutronen bei einem Zusammenstoß mit einem Proton die Hälfte und bei einem Zusammenstoß mit einem Kohlenstoffatom 14% ihrer Energie.

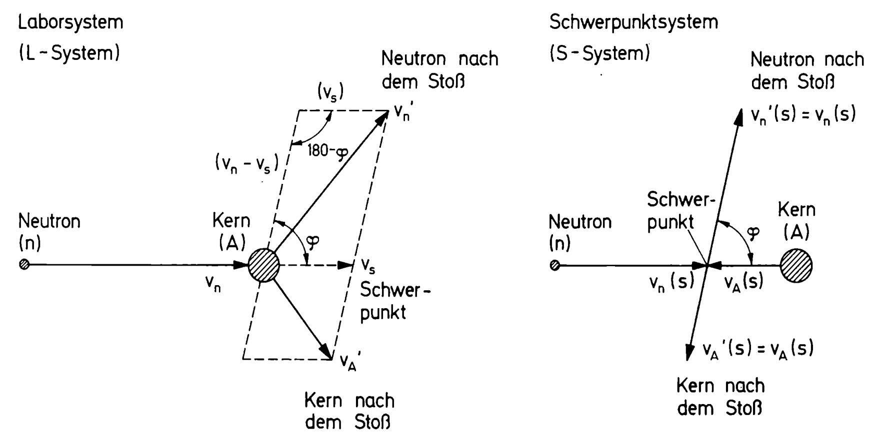


Abb. (8–2) Elastische Streuung von Neutronen, links im Laborsystem, rechts im Schwerpunktsystem (Vorteil des Schwerpunktsystems: Nur die Richtung der Geschwindigkeiten ändert sich, nicht der Betrag; Übergang vom Laborsystem zum Schwerpunktsystem durch Subtraktion des Geschwindigkeitsvektors v_S für den Schwerpunkt).

Geladene Teilchen (Protonen, Deuteronen, α-Teilchen, mittelschwere und schwere Ionen) werden als Geschosse für Kernreaktionen meistens aus einem Beschleuniger entnommen. Sie müssen eine Mindestenergie besitzen, damit sie die Coulombsche Abstoßung überwinden können. Diese Energie steigt mit der Ladung an. Die Höhe der

Potentialschwelle U beträgt näherungsweise (für kleine Werte von Z_A bzw. Z_x)

$$U \approx \frac{Z_A Z_x e^2}{r} \approx \frac{Z_A Z_x}{A_A^{1/3} + A_x^{1/3}} \frac{(4{,}8)^2 \cdot 10^{-20}}{1{,}4 \cdot 10^{-13} \cdot 1{,}60 \cdot 10^{-6}} \approx \frac{Z_A \cdot Z_x}{A_A^{1/3} + A_x^{1/3}} \text{MeV}; \tag{8.27}$$

Z_A und A_A sind die Ordnungszahl bzw. Massenzahl des Kerns A, Z_x und A_x die des Geschosses x, e ist die Elementarladung und r der Abstand, in dem die Kernkräfte wirksam werden; dieser Abstand wurde zu

$$r = r_0(A_A^{1/3} + A_x^{1/3}) \tag{8.28}$$

eingesetzt mit $r_0 = 1{,}4 \cdot 10^{-13}$ cm. Die Ladungen sind punktförmig angenommen; für schwerere Kerne ergibt sich der effektive Abstand durch Aufsummieren der Abstoßungskräfte zwischen den einzelnen Protonen der beiden Kerne. Man berechnet mit der Näherungsgleichung (8.27) für die Reaktion zwischen einem Proton und einem Kohlenstoffatom $U \approx 1{,}8$ MeV, für die Reaktion zwischen einem Proton und einem Urankern $U \approx 13$ MeV, für die Reaktion zwischen einem α-Teilchen und einem Urankern $U \approx 24$ MeV, für die Reaktion zwischen einem Kohlenstoffkern und einem Urankern $U \approx 130$ MeV und für die Reaktion zwischen zwei Urankernen $U \approx 700$ MeV. Bei höheren Ordnungszahlen treten aus den obengenannten Gründen erhebliche Abweichungen auf. Ein genauerer Wert für die Coulombsche Abstoßung zwischen zwei Urankernen ist $U \approx 1500$ MeV.

Wenn kein zentraler Zusammenstoß stattfindet, muß bei den Kernreaktionen mit geladenen Teilchen auch der Bahndrehimpuls berücksichtigt werden, der ein ganzzahliges Vielfaches von $\frac{h}{2\pi}$ beträgt (vgl. Abschn. 2.4.). Die Wechselwirkungen werden durch die Buchstaben *s*, *p*, *d*, *f* gekennzeichnet, in Anlehnung an die Bezeichnung der Elektronenzustände. *s* entspricht dem Wert $\Delta l = 0$ ($\Delta l =$ Änderung der Quantenzahl für den Bahndrehimpuls), *p* dem Wert $\Delta l = 1$ usw. Ist $\Delta l > 0$ (nicht-zentraler Stoß), so tritt eine zusätzliche Potentialschwelle auf, die als Zentrifugalschwelle bezeichnet wird. Sie beträgt

$$V = \frac{h^2 \Delta l(\Delta l + 1)}{8\pi^2 \mu r_0^2 (A_A^{1/3} + A_x^{1/3})^2} \tag{8.29}$$

($\mu = \frac{m_A \cdot m_x}{m_A + m_x}$ ist die reduzierte Masse des Systems). Diese Zentrifugalschwelle addiert sich zu der Coulombschen Potentialschwelle; im Falle des zentralen Stoßes ($\Delta l = 0$) ist $V = 0$.

Bei einer Kernreaktion besteht auch die Möglichkeit eines Tunneleffektes (ähnlich wie beim α-Zerfall), so daß nach den Gesetzen der Quantenmechanik auch solche Teilchen reagieren können, die eine kinetische Energie $E < U + V$ besitzen.

Von den geladenen Teilchen werden Protonen am häufigsten als Geschosse für Kernreaktionen verwendet, daneben Deuteronen und α-Teilchen, in seltenen Fällen auch ^{3}He-Kerne. Eine große Bedeutung für die Kernchemie besitzen leichte, mittelschwere und schwere Ionen als Geschosse für Kernreaktionen, weil mit ihnen in einem Schritt Transuranelemente mit sehr viel höherer Ordnungszahl dargestellt werden können. Im Hinblick auf die Durchführung derartiger Reaktionen sind Schwerionenbeschleuniger besonders interessant, welche die Herstellung von sogenannten „Superelementen" mit Ordnungszahlen $Z > 110$ ermöglichen sollen. In diesem Zusammenhang ist auch die Reaktion zwischen zwei Urankernen von Interesse, wobei allerdings sehr hohe Energien aufgewendet werden müssen, wie die obige Rechnung zeigt.

Photonen (γ-Quanten) können — ebenso wie Neutronen — ungehindert in den Kern eindringen. Wenn sie genügend hohe kinetische Energie mitbringen, die größer ist als die Bindungsenergie eines Protons, Neutrons oder α-Teilchens, kann eine Kernreaktion stattfinden. Die Schwellenenergie für solche Reaktionen ist somit durch die Bindungsenergie dieser Teilchen gegeben. Reaktionen, die durch Photonen (γ-Quanten) ausgelöst werden, bezeichnet man als Kernphotoreaktionen. Ein einfaches Beispiel einer Kernphotoreaktion ist die Spaltung des Deuterons durch γ-Quanten

$$\mathrm{d} + \gamma \longrightarrow \mathrm{p} + \mathrm{n}. \tag{8.30}$$

Die Schwellenenergie der Photonen für diese Reaktion beträgt 2,225 MeV; sie entspricht der Bindungsenergie zwischen Proton und Neutron. Messungen der Schwellenenergie für Kernphotoreaktionen sind von großer Bedeutung für die genaue Bestimmung von Bindungsenergien. Ein anderes Beispiel ist die Erzeugung von Neutronen durch Bestrahlung von Beryllium mit γ-Strahlen (Neutronenquelle)

$$^{9}_{4}Be + \gamma \longrightarrow {}^{4}_{2}He + {}^{4}_{2}He + {}^{1}_{0}n. \tag{8.31}$$

Die Schwellenenergie für diese Reaktion ist gegeben durch die Bindungsenergie des „letzten“ (fünften) Neutrons im Be–9; sie beträgt 1,665 MeV.

Elektronen und Positronen sind nur in seltenen Fällen für Kernreaktionen wichtig. Elektronen werden zwar ebenfalls auf hohe Energien beschleunigt, dienen aber in den meisten Fällen zur Erzeugung von γ-Strahlen, die beim Abbremsen der hochenergetischen Elektronen in einem Target entstehen (vgl. Abschn. 6.4.1.).

8.4. Übersicht über die Umwandlung von Nukliden durch Kernreaktionen

Durch Verwendung verschiedener Geschosse und Variation der Energie kann eine Vielzahl von Kernreaktionen ausgelöst werden. Eine Übersicht über die Möglichkeiten für die Umwandlung von Nukliden durch Kernreaktionen kann man sich am besten an Hand der Nuklidkarte verschaffen. Ein Ausschnitt aus der Nuklidkarte ist in Abb. (8–3) wiedergegeben. Betrachten wir zunächst die Reaktionen, die durch Neutronen ausgelöst werden können: Legt man die Vorstellung von der Bildung eines Zwischenkerns (vgl. Abschn. 8.1., Gl (8.6)) zu Grunde, so entsteht in jedem Falle zunächst als Zwischenkern ein isotopes Nuklid, das dann je nach seiner Struktur und seinem Anregungszustand in verschiedener Weise zerfallen kann. Bei einer (n, γ)-Reaktion entsteht ein isotopes Nuklid, das seine Anregungsenergie in Form eines γ-Quants abgibt. Bei einer (n, p)-Reaktion erhält man ein isobares Nuklid. Bei einer (n, α)-Reaktion bildet sich ein Nuklid, das zwei Protonen und ein Neutron weniger enthält (Schema eines „Rösselsprungs“). Bei einer (n, 2n)-Reaktion entsteht wiederum ein isotopes, aber neutronenärmeres Nuklid.

In gleicher Weise kann man die Kernreaktionen diskutieren, die mit Protonen als Geschossen ablaufen und ebenfalls in Abb. (8–3) eingezeichnet sind, zum Beispiel (p, γ)-, (p, n)- und (p, α)-Reaktionen. Die wichtigsten Reaktionen mit Deuteronen sind: (d, p)-, (d, n)- und (d, α)-Reaktionen. Auch einige Reaktionen mit α-Teilchen als Geschossen sind in Abb. (8–3) eingetragen. Bei den durch γ-Quanten ausgelösten Kernreaktionen (Kernphotoreaktionen) ist der Zwischenkern identisch mit dem im Target vorgelegten Nuklid; er unterscheidet

sich von diesem nur durch seine Anregungsenergie. Welche der in Abb. (8–3) angegebenen Reaktionen bevorzugt abläuft, ist in starkem Maße von der Energie der einfallenden Strahlung abhängig.

Eine Kernreaktion kann zu stabilen oder instabilen (radioaktiven) Reaktionsprodukten führen. Wird ein stabiles Nuklid im Target vorgelegt, so erhält man im allgemeinen durch (n, γ)-, (n, p)- und (d, p)-Reaktionen β^--aktive Nuklide bzw. durch (p, n)-, (d, 2n)-, (n, 2n)-, (γ, n)-, (d, n)- und (p, γ)-Reaktionen β^+-aktive Nuklide oder K-Strah-

		α,2n	α,n	
p,2n	p,n d,2n	α,t p,γ d,n	t,n	α,p
	d,t n,2n γ,n p,pn		d,p n,γ t,d	t,p
p,α	d,α	n,d γ,p	n,p d,2p	
	n,α			

Z = P →

A − Z = N →

Abb. (8–3) Übersicht über die Umwandlungen von Nukliden durch Kernreaktionen.

ler. Ob die Reaktionsprodukte β^-- oder β^+-Aktivität zeigen, hängt von ihrer Position relativ zur Linie der β-Stabilität ab (vgl. Abschn. 1.4.).

Für die Kernreaktionen mit leichten Nukliden (A < 25) lassen sich keine allgemeinen Regeln aufstellen. Bei mittelschweren und schweren Nukliden dagegen sind einige allgemeine Aussagen möglich, die von BLATT und WEISSKOPF 1952 zusammengestellt wurden und in Tabelle 8.1. wiedergegeben sind. Bei höheren Energien finden in steigendem Maße solche Kernreaktionen statt, bei denen (infolge der hohen Anregungsenergie) zwei und mehr Nukleonen emittiert werden. Das glei-

Tabelle 8.1.
Bevorzugte Kernreaktionen für verschiedene Energiebereiche

Einfallende Strahlen im Energiebereich	Mittelschwere Nuklide (25 < A < 80)				Schwere Nuklide (80 < A < 250)			
	n	p	d	α	n	p	d	α
0 – 1 keV	n, γ	—	—	—	n, γ	—	—	—
1 – 500 keV	n, γ	p, n p, γ p, α	d, p d, n	α, n α, γ α, p	n, γ	—	—	—
0,5 – 10 MeV	n, α n, p	p, n p, α	d, p d, n d, pn d, 2 n	α, n α, p	n, p n, γ	p, n p, γ	d, p d, n d, pn d, 2 n	α, n α, p α, γ
10 – 50 MeV	n, 2 n n, p n, np n, 2 p n, α	p, 2 n p, n p, np p, 2 p p, α	d, p d, 2 n d, pn d, 3 n d, t	α, 2 n α, n α, p α, np α, 2 p	n, 2 n n, p n, pn n, 2 p n, α	p, 2 n p, n p, np p, 2 p p, α	d, p d, 2 n d, np d, 3 n d, t	α, 2 n α, n α, p α, np α, 2 p

che gilt auch für Kernphotoreaktionen, die in Tabelle 8.1. nicht aufgeführt sind. Mit wachsender Energie der γ-Quanten tritt die Emission mehrerer Nukleonen immer stärker in den Vordergrund. So findet man bei hohen γ-Energien neben (γ, n)-Reaktionen (γ, 2n)-, (γ, 3n)- und (γ, 4n)-Reaktionen. Bei größeren Energien ist auch die Vorstellung von der Bildung eines Zwischenkerns nicht mehr brauchbar. Unter diesen Bedingungen tritt die direkte Wechselwirkung zwischen den einfallenden Teilchen und den einzelnen Nukleonen immer stärker in den Vordergrund. Um ein anschauliches Bild zu benutzen: Durch hochenergetische Geschosse, die mit sehr hohen Geschwindigkeiten auf den Kern treffen, wird nicht mehr die Gesamtheit der Nukleonen angeregt, sondern einzelne Nukleonen werden direkt „herausgeschossen."

Bemerkenswert ist die Tatsache, daß die meisten Nuklide durch verschiedene Kernreaktionen hergestellt werden können. Auf diese Weise ist auch die Identifizierung von Radionukliden durch Kreuzbombardierung (englisch „cross bombardment") möglich. Man wählt mehrere Kernreaktionen zur Erzeugung des betreffenden Radionuklids aus und prüft, ob die Reaktionsprodukte identisch sind.

Isotope Nuklide erhält man durch (n, γ)-, (d, p)-, (n, 2n)- und (γ, n)-Reaktionen. In diesen Fällen sind die Reaktionsprodukte mit dem im Target vorgelegten Nuklid chemisch identisch; eine chemische Trennung ist im allgemeinen nicht möglich, wenn man nicht die chemischen Effekte der Kernreaktionen ausnutzt, die in Kapitel 9 besprochen werden. (n, p)-Reaktionen, (p,n)-Reaktionen und (d, 2n)-Reaktionen führen zu isobaren Nukliden.

8.5. Beispiele

In diesem Abschnitt werden einige Beispiele von Kernreaktionen besprochen, und zwar bevorzugt solche, die praktische Bedeutung besitzen. Die erste Beobachtung einer künstlichen Kernumwandlung unter dem Einfluß von α-Strahlen (RUTHERFORD 1919) wurde bereits erwähnt:

$$^{14}_{7}\mathrm{N} + ^{4}_{2}\mathrm{He} \longrightarrow (^{18}_{9}\mathrm{F}) \longrightarrow ^{17}_{8}\mathrm{O} + ^{1}_{1}\mathrm{H}, \qquad (8.32)$$

Kurzschreibweise: $^{14}\mathrm{N}(\alpha, \mathrm{p})^{17}\mathrm{O}$.

Von großer Bedeutung war die Entdeckung des Neutrons durch CHADWICK (1932) beim Beschuß von Beryllium mit α-Strahlen:

$$^{9}_{4}\mathrm{Be} + {}^{4}_{2}\mathrm{He} \longrightarrow ({}^{13}_{6}\mathrm{C}) \longrightarrow {}^{12}_{6}\mathrm{C} + {}^{1}_{0}\mathrm{n}, \quad (8.33)$$

Kurzschreibweise: $^{9}\mathrm{Be}(\alpha, \mathrm{n})\,^{12}\mathrm{C}$.

Li–7 kann mit Protonen unter Bildung von zwei α-Teilchen reagieren (weitere Reaktionen siehe Gln. (8.37) und (8.38)):

$$^{7}_{3}\mathrm{Li} + {}^{1}_{1}\mathrm{H} \longrightarrow ({}^{8}_{4}\mathrm{Be}) \longrightarrow {}^{4}_{2}\mathrm{He} + {}^{4}_{2}\mathrm{He}, \quad (8.34)$$

Kurzschreibweise: $^{7}\mathrm{Li}(\mathrm{p}, \alpha)\,\alpha$.

Dabei wird der hohe Energiebetrag von 17,35 MeV frei, der sich auf die beiden α-Teilchen verteilt. In ähnlicher Weise reagiert auch B–11:

$$^{11}_{5}\mathrm{B} + {}^{1}_{1}\mathrm{H} \longrightarrow ({}^{12}_{6}\mathrm{C}) \longrightarrow {}^{8}_{4}\mathrm{Be} + {}^{4}_{2}\mathrm{He} \longrightarrow 3\,{}^{4}_{2}\mathrm{He}, \quad (8.35)$$

Kurzschreibweise: $^{11}_{5}\mathrm{B}(\mathrm{p}, \alpha)\,2\,\alpha$.

Be–8 ist instabil und zerfällt praktisch momentan ($t_{1/2} = 2 \cdot 10^{-16}$ s) in zwei α-Teilchen. Der gleiche Zwischenkern bildet sich auch bei einer (p, n)-Reaktion aus B–11:

$$^{11}_{5}\mathrm{B} + {}^{1}_{1}\mathrm{H} \longrightarrow ({}^{12}_{6}\mathrm{C}) \longrightarrow {}^{11}_{6}\mathrm{C} + {}^{1}_{0}\mathrm{n}, \quad (8.36)$$

Kurzschreibweise: $^{11}\mathrm{B}(\mathrm{p}, \mathrm{n})\,^{11}\mathrm{C}$.

(p, n)-Reaktionen sind meist endoergisch. Bei einer (p, γ)-Reaktion mit Li–7 entstehen wiederum zwei α-Teilchen:

$$^{7}_{3}\mathrm{Li} + {}^{1}_{1}\mathrm{H} \longrightarrow ({}^{8}_{4}\mathrm{Be}) \longrightarrow {}^{8}_{4}\mathrm{Be} + \gamma \longrightarrow 2\,{}^{4}_{2}\mathrm{He} + \gamma, \quad (8.37)$$

Kurzschreibweise: $^{7}\mathrm{Li}(\mathrm{p}, \gamma)\,2\,\alpha$.

Die hohe Anregungsenergie des Zwischenkerns Be–8 wird dabei in Form eines γ-Quants abgegeben. Eine (p, d)-Reaktion führt von Li–7 zu Li–6:

$$^{7}_{3}\text{Li} + ^{1}_{1}\text{H} \longrightarrow (^{8}_{4}\text{Be}) \longrightarrow ^{6}_{3}\text{Li} + ^{2}_{1}\text{H}, \qquad (8.38)$$

Kurzschreibweise: $^{7}\text{Li}\,(\text{p}, \text{d})\,^{6}\text{Li}$.

Ein Beispiel für eine (d, α)-Reaktion ist

$$^{6}_{3}\text{Li} + ^{2}_{1}\text{H} \longrightarrow (^{8}_{4}\text{Be}) \longrightarrow 2\,^{4}_{2}\text{He}, \qquad (8.39)$$

Kurzschreibweise: $^{6}\text{Li}\,(\text{d}, \alpha)\,\alpha$.

(d, α)-Reaktionen sind meist exoergisch. Bei allen drei vorgenannten Reaktionen bildet sich der gleiche Zwischenkern.

Recht interessante Kernreaktionen sind die (d, p)- und (d, n)-Reaktionen, weil dabei von den beiden Nukleonen des Deuterons nur jeweils eines an den Produktkern übertragen wird. Deshalb nennt man diese Reaktionen auch Abstreifreaktionen (englisch „stripping reactions"). Beispiele sind

$$^{12}_{6}\text{C} + ^{2}_{1}\text{H} \longrightarrow ^{13}_{6}\text{C} + ^{1}_{1}\text{H}, \qquad (8.40)$$

Kurzschreibweise: $^{12}\text{C}\,(\text{d}, \text{p})\,^{13}\text{C}$;

und

$$^{12}_{6}\text{C} + ^{2}_{1}\text{H} \longrightarrow ^{13}_{7}\text{N} + ^{1}_{0}\text{n}, \qquad (8.41)$$

Kurzschreibweise: $^{12}\text{C}\,(\text{d}, \text{n})\,^{13}\text{N}$.

Auffallend ist die Tatsache, daß (d, p)-Reaktionen auch dann stattfinden, wenn die Energie des Deuterons nicht ausreicht, um die Coulombsche Abstoßung durch den Kern zu überwinden. Nach OPPENHEIMER und PHILLIPS macht man sich folgendes Bild vom Reaktions-

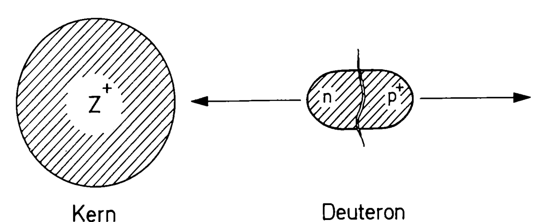


Abb. (8–4) Oppenheimer-Phillips-Reaktion.

ablauf (Abb. (8–4)): Wenn sich das Deuteron dem Kern nähert, wird es unter dem Einfluß der Coulombkräfte so orientiert, daß das Neutron dem Kern zugewandt ist. So gelangt das Neutron in den Bereich der Kernkräfte, während das Proton abgestoßen wird. Dabei trennt sich das Neutron von dem Proton verhältnismäßig leicht, da ihre Bindungsenergie mit 2,23 MeV klein ist gegenüber der mittleren Bindungsenergie eines Nukleons im Kern ($\approx$ 8 MeV). Man bezeichnet diesen Reaktionstyp auch als Oppenheimer-Phillips-Reaktion. Mit D_2O sind folgende Abstreifreaktionen möglich (zum Beispiel durch Bestrahlung von festem D_2O mit Deuteronen aus einem Beschleuniger):

$$^{2}_{1}H + ^{2}_{1}H \longrightarrow ^{3}_{1}H + ^{1}_{1}H, \tag{8.42}$$

Kurzschreibweise: d (d, p) t;

$$^{2}_{1}H + ^{2}_{1}H \longrightarrow ^{3}_{2}He + ^{1}_{0}n, \tag{8.43}$$

Kurzschreibweise: d (d, n) ^{3}He.

Diese Reaktionen können zur Erzeugung von Tritium bzw. ^{3}He dienen.

Große praktische Bedeutung besitzen die Kernreaktionen mit Neutronen. Diese stehen in Kernreaktoren in großen Mengen zur Verfügung, weil sie bei der Kernspaltung entstehen; sie können aber auch durch Kernreaktionen gewonnen werden, und zwar entweder durch die Einwirkung radioaktiver Strahlung auf geeignete Nuklide oder in Beschleunigern. So liefert eine Mischung von Beryllium mit einem α-Strahler oder einem γ-Strahler genügend hoher Energie Neutronen:

$$^{9}Be\,(\alpha, n)\,^{12}C, \tag{8.44}$$

$$^{9}Be\,(\gamma, n)\,^{8}Be. \tag{8.45}$$

Man nennt solche Anordnungen Neutronenquellen. Als α-Strahler kommen vor allen Dingen langlebige Radionuklide in Frage, zum Beispiel die in der Natur vorkommenden Nuklide Ra–226 oder Po–210. Man spricht dann von einer Radium-Beryllium- bzw. Polonium-Beryllium-Neutronenquelle. Von den künstlichen Radionukliden haben die Plutonium- und Curiumisotope eine gewisse Bedeutung

gewonnen. Als γ-Strahler kommen nur solche in Frage, deren γ-Energie größer ist als die Schwellenenergie der Kernreaktion (8.45), die 1,665 MeV beträgt. Geeignet sind Sb–124 ($t_{1/2} = 60$ d), Na–24 ($t_{1/2} = 15{,}0$ h), Mn–56 ($t_{1/2} = 2{,}6$ h) und La–140 ($t_{1/2} = 40{,}2$ h); die Halbwertzeiten dieser γ-Strahler sind jedoch verhältnismäßig gering. Derartige Neutronenquellen werden auch als Photoneutronenquellen bezeichnet. Eine andere Kernreaktion zur Erzeugung von Neutronen durch Bestrahlung mit γ-Quanten ist (vgl. Gl. (8.30))

$$\mathrm{d}\,(\gamma, \mathrm{n})\,\mathrm{p}. \tag{8.46}$$

Die Schwierigkeit besteht in diesem Falle darin, das Deuterium in geeigneter Form als Target vorzulegen. Die Ausbeuten an Neutronen, die man mit den verschiedenen Neutronenquellen erzielt, sind verhältnismäßig niedrig; sie hängen von der Menge (Aktivität) des Radionuklids ab. So werden in einer Radium-Beryllium-Neutronenquelle, die 1 Ci Ra–226 enthält, etwa 10^7 Neutronen erzeugt, die radial ausgestrahlt werden.

Die andere Möglichkeit zur Erzeugung von Neutronen besteht darin, geladene Teilchen aus einem Beschleuniger auf ein geeignetes Target einwirken zu lassen. Vorzugsweise werden Deuteronen verwendet, die auf Beryllium auftreffen:

$$^{9}\mathrm{Be}\,(\mathrm{d}, \mathrm{n})\,^{10}\mathrm{B}. \tag{8.47}$$

Auch die Reaktion

$$\mathrm{d}\,(\mathrm{d}, \mathrm{n})\,^{3}\mathrm{He} \tag{8.48}$$

ist geeignet. Aber in diesem Falle bereitet die Auswahl eines geeigneten Deuterium-haltigen Targets wiederum gewisse Schwierigkeiten. Die Neutronenausbeute, die man bei Verwendung eines Beschleunigers erzielen kann, ist der Intensität der Strahlung proportional. Energiereiche Neutronen können in einem sogenannten Neutronengenerator durch folgende Reaktion erzeugt werden

$$\mathrm{t}\,(\mathrm{d}, \mathrm{n})\,\alpha; \tag{8.49}$$

Deuteronen werden beschleunigt (z. B. in einem van de Graaff-Gene-

rator) und wirken auf ein Tritium-haltiges Target ein. Die Energie der Neutronen, die bei dieser Reaktion entstehen, beträgt etwa 14 MeV.

Eine technisch sehr wichtige Reaktion, die mit thermischen Neutronen und sehr hoher Ausbeute abläuft, ist die Erzeugung von Tritium

$$ {}^{6}_{3}\mathrm{Li} + {}^{1}_{0}\mathrm{n} \longrightarrow ({}^{7}_{3}\mathrm{Li}) \longrightarrow {}^{3}_{1}\mathrm{H} + {}^{4}_{2}\mathrm{He}, \qquad (8.50)$$

Kurzschreibweise: $^{6}\mathrm{Li}\,(\mathrm{n}, \alpha)\,\mathrm{t}$.

Diese Reaktion ist im Gegensatz zu den meisten anderen (n, α)-Reaktionen exoergisch. Von großer praktischer Bedeutung ist ferner die Gewinnung von C–14 aus Stickstoff:

$$ {}^{14}_{7}\mathrm{N} + {}^{1}_{0}\mathrm{n} \longrightarrow ({}^{15}_{7}\mathrm{N}) \longrightarrow {}^{14}_{6}\mathrm{C} + {}^{1}_{1}\mathrm{H}, \qquad (8.51)$$

Kurzschreibweise: $^{14}\mathrm{N}\,(\mathrm{n}, \mathrm{p})\,^{14}\mathrm{C}$.

Auch diese Reaktion verläuft ausnahmsweise mit thermischen Neutronen. Fast alle anderen (n, p)-Reaktionen sind endoergisch; d. h. sie erfordern Neutronen höherer Energie. Verhältnismäßig stark endoergisch sind alle (n, 2n)-Reaktionen, bei denen der Zwischenkern zwei Neutronen aussendet, zum Beispiel:

$$ {}^{27}_{13}\mathrm{Al} + {}^{1}_{0}\mathrm{n} \longrightarrow ({}^{28}_{13}\mathrm{Al}) \longrightarrow {}^{26}_{13}\mathrm{Al} + 2\,{}^{1}_{0}\mathrm{n}, \qquad (8.52)$$

Kurzschreibweise: $^{27}\mathrm{Al}\,(\mathrm{n}, 2\,\mathrm{n})\,^{26}\mathrm{Al}$.

(n, 2n)-Reaktionen sind nur mit energiereichen Neutronen möglich (Energie größer als etwa 10 MeV). Da die Schwellenenergie für (n, 2n)-Reaktionen höher ist als diejenige für (n,p)-Reaktionen, können durch Bestimmung der Ausbeute Aussagen über die Energie der Neutronen gewonnen werden.

Die größte praktische Bedeutung besitzen die (n, γ)-Reaktionen, die zur Herstellung einer Vielzahl der im Handel befindlichen Radionuklide dienen. Beispiele sind

$$ {}^{23}_{11}\mathrm{Na} + {}^{1}_{0}\mathrm{n} \longrightarrow ({}^{24}_{11}\mathrm{Na}) \longrightarrow {}^{24}_{11}\mathrm{Na} + \gamma, \qquad (8.53)$$

Kurzschreibweise: $^{23}\mathrm{Na}\,(\mathrm{n}, \gamma)\,^{24}\mathrm{Na}$;

$$^{59}_{27}\mathrm{Co} + ^{1}_{0}\mathrm{n} \longrightarrow (^{60}_{27}\mathrm{Co}) \longrightarrow ^{60}_{27}\mathrm{Co} + \gamma, \qquad (8.54)$$

Kurzschreibweise: $^{59}\mathrm{Co}\,(\mathrm{n}, \gamma)\,^{60}\mathrm{Co}$;

$$^{197}_{79}\mathrm{Au} + ^{1}_{0}\mathrm{n} \longrightarrow (^{198}_{79}\mathrm{Au}) \longrightarrow ^{198}_{79}\mathrm{Au} + \gamma, \qquad (8.55)$$

Kurzschreibweise: $^{197}\mathrm{Au}\,(\mathrm{n}, \gamma)\,^{198}\mathrm{Au}$.

(n, γ)-Reaktionen sind mit fast allen Nukliden möglich und verlaufen im allgemeinen mit verhältnismäßig hohen Ausbeuten.

Faßt man ein bestimmtes Radionuklid ins Auge, so kann dieses im allgemeinen auf verschiedenen Wegen entstehen. Als Beispiel sei die Bildung von Na–24 angeführt:

$$\begin{array}{lll} ^{23}\mathrm{Na} & (\mathrm{n}, \gamma) & ^{24}\mathrm{Na} \\ ^{24}\mathrm{Mg} & (\mathrm{n}, \mathrm{p}) & ^{24}\mathrm{Na} \\ ^{27}\mathrm{Al} & (\mathrm{n}, \alpha) & ^{24}\mathrm{Na} \\ ^{23}\mathrm{Na} & (\mathrm{d}, \mathrm{p}) & ^{24}\mathrm{Na} \\ ^{26}\mathrm{Mg} & (\mathrm{d}, \alpha) & ^{24}\mathrm{Na} \\ ^{27}\mathrm{Al} & (\mathrm{d}, \mathrm{p}\alpha) & ^{24}\mathrm{Na} \\ ^{25}\mathrm{Mg} & (\gamma, \mathrm{p}) & ^{24}\mathrm{Na} \\ ^{27}\mathrm{Al} & (\gamma, 2\mathrm{pn}) & ^{24}\mathrm{Na} \\ ^{27}\mathrm{Al} & (\mathrm{p}, 3\mathrm{pn}) & ^{24}\mathrm{Na} \end{array} \qquad (8.56)$$

Andererseits kann man aus den gleichen Reaktionspartnern verschiedene Endprodukte erhalten, z. B.

$$^{27}_{13}\mathrm{Al} + ^{2}_{1}\mathrm{H} \longrightarrow (^{29}_{14}\mathrm{Si}) \begin{array}{l} \nearrow\ ^{25}_{12}\mathrm{Mg} + ^{4}_{2}\mathrm{He} \\ \rightarrow\ ^{28}_{13}\mathrm{Al} + ^{1}_{1}\mathrm{H} \\ \rightarrow\ ^{28}_{14}\mathrm{Si} + ^{1}_{0}\mathrm{n} \\ \searrow\ ^{24}_{11}\mathrm{Na} + ^{1}_{1}\mathrm{H} + ^{4}_{2}\mathrm{He} \end{array} \qquad (8.57)$$

Welche Reaktion bevorzugt eintritt, hängt im wesentlichen von der Energie der Strahlung ab. Man stellt sich dabei vor, daß der Zwischenkern, der sich intermediär bildet, je nach seinem Anregungszustand in verschiedener Weise zerfallen kann.

Bisher haben wir nur Kernreaktionen mit leichten Teilchen betrachtet (n, p, d, α, γ). Wenn man schwerere Ionen auf hinreichend hohe Energien beschleunigt, so daß sie die Coulombsche Abstoßung überwinden können (vgl. Abschn. 8.3.), ist es möglich, eine Vielzahl

von weiteren Kernreaktionen auszuführen. Beispiele für Kernreaktionen mit schwereren Ionen werden in den Abschn. 8.10. (Fusionsreaktionen) sowie 14.4.3. und 14.4.4. (Kernreaktionen mit schweren Ionen) besprochen.

Bei Verwendung von schwereren Ionen als Geschossen finden häufig sog. Transferreaktionen statt. Dabei werden ein oder mehrere Nukleonen von dem Geschoßkern auf einen anderen Kern übertragen. Die Transferreaktionen können somit als eine Erweiterung der Abstreifreaktionen aufgefaßt werden. Wenn nur ein Neutron übertragen wird, so spricht man von einem Neutronen-Transfer; das einfachste Beispiel ist eine (d, p)-Reaktion, ein anderes Beispiel die Reaktion $^{14}N(^{14}N, ^{13}N)^{15}N$. Beispiele für Mehr-Nukleonen-Transfer-Reaktionen sind (^{19}F, ^{16}O)-, (^{7}Li, t)- und (^{16}O, ^{12}C)-Reaktionen; die erstere ist der Übertragung eines Tritons äquivalent, die letzteren der Übertragung eines α-Teilchens.

8.6. Wirkungsquerschnitt

Der Wirkungsquerschnitt σ einer Kernreaktion ist vergleichbar mit der Geschwindigkeitskonstanten k einer chemischen Reaktion, zum Beispiel

$$\frac{\mathrm{d}c}{\mathrm{d}t} = k \cdot c_1 \cdot c_2, \tag{8.58}$$

wenn c die Konzentration eines Reaktionsproduktes und c_1 bzw. c_2 die Konzentrationen der beiden Reaktionspartner sind. Reaktionspartner bei einer Kernreaktion sind nach der allgemeinen Gleichung

$$\mathrm{A} + \mathrm{x} \longrightarrow \mathrm{B} + \mathrm{y} \tag{8.59}$$

das Nuklid A (im Target) und der Strahl der Teilchen x. Da wir — wie bereits in Abschnitt 8.1. hervorgehoben — bei Kernreaktionen die einzelnen Atome betrachten, setzen wir an Stelle der Konzentration der Nuklide A und B die Zahl der Atome N_A bzw. N_B ein und an Stelle der Konzentration der Teilchen x ihre Zahl pro s und cm^2. Diese Größe nennt man die Flußdichte Φ der Teilchen x — meist kurz den „Fluß" Φ. Für eine Kernreaktion gilt dann analog Gl. (8.58):

$$\frac{dN_B}{dt} = \sigma \cdot \Phi \cdot N_A. \tag{8.60}$$

Der Wirkungsquerschnitt σ ist somit (ähnlich wie die Geschwindigkeitskonstante k) ein Maß für die Wahrscheinlichkeit, daß die Reaktion eintritt. Die Dimension des Wirkungsquerschnitts σ ist cm^2. Aus Gl. (8.60) ergibt sich die allgemeine Definition des Wirkungsquerschnitts: Zahl der betrachteten Ereignisse pro Atom und Sekunde, dividiert durch die Flußdichte der einfallenden Teilchen pro cm^2 und Sekunde.

Der Wirkungsquerschnitt ist eine sehr wichtige Größe. Kennt man ihn sowie die Flußdichte Φ, so kann der Ablauf von Kernreaktionen vorausberechnet werden. Die experimentelle Bestimmung des Wirkungsquerschnitts erfolgt durch Messung der Ausbeute für die betreffende Kernreaktion als Funktion der Energie der Geschosse. Insbesondere die Wirkungsquerschnitte für Neutronen verschiedener Energie wurden von vielen Arbeitsgruppen sehr eingehend untersucht, aber bis zur ersten Genfer Atomkonferenz im Jahre 1955 in den USA, in England und der UdSSR streng geheim gehalten. Auf der ersten Genfer Atomkonferenz wurden die Werte dann erstmals verglichen. Sie sind in umfangreichen Handbüchern als Funktion der Energie der Neutronen aufgezeichnet.

Anschaulich kann man sich den Wirkungsquerschnitt folgendermaßen vorstellen (Abb. (8–5)): Der Strahl der Teilchen x trifft mit einer bestimmten Flußdichte Φ auf das Target auf, das die Atome des Nuklids A enthält. Die Atomkerne sind als kleine Zielscheiben mit

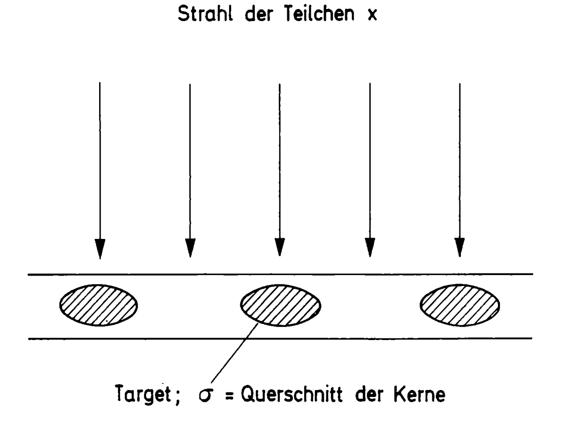


Abb. (8–5) Zur Erläuterung des Wirkungsquerschnitts einer Kernreaktion.

dem Querschnitt σ dargestellt. Je größer diese Zielscheiben sind, desto größer ist die Wahrscheinlichkeit eines Treffers. Auch die Proportionalität zur Zahl N_A der Atome A und zur Flußdichte Φ der einfallenden Strahlung geht aus dieser Darstellung hervor. Die Größe der Zielscheiben sollte nach diesem Bild vergleichbar sein mit dem Querschnitt der Atomkerne. Der Durchmesser der Atomkerne ist von der Größenordnung 10^{-12} cm, ihr Querschnitt somit von der Größenordnung 10^{-24} cm^2. Diese Fläche wird als Einheit für den Wirkungsquerschnitt von Kernreaktionen gewählt und als 1 barn bezeichnet:

$$1 \text{ barn (abgekürzt 1 b)} = 10^{-24} \text{cm}^2. \tag{8.61}$$

Die Bezeichnung „barn“ kommt aus dem Angelsächsischen und bedeutet „Scheunentor“. Als die ersten Wirkungsquerschnitte experimentell bestimmt wurden, fand man verhältnismäßig hohe Werte („as big as a barn“). Dieses anschauliche Bild, in dem die Atome als Zielscheiben gedacht sind, kann nur als eine sehr grobe Näherung angesehen werden, weil die Kernkräfte und die Coulombschen Wechselwirkungen mit geladenen Teilchen nicht berücksichtigt sind. Deshalb können die Wirkungsquerschnitte im allgemeinen nicht nach dieser Vorstellung berechnet werden; sie weichen oft um viele Größenordnungen von dem Querschnitt der Atomkerne ab. Außerdem findet man für verschiedene Reaktionen an demselben Nuklid oft sehr unterschiedliche Werte. Die Wirkungsquerschnitte für die Streuung von Neutronen hoher Energie (> 10 MeV) stimmen allerdings recht gut mit dem einfachen Modell der Zielscheiben überein.

Der Wirkungsquerschnitt bezieht sich jeweils auf eine bestimmte Reaktion, zum Beispiel auf eine (n, γ)-Reaktion oder eine (n, p)-Reaktion mit einem bestimmten Nuklid A. Dies wird durch entsprechende Indizes angegeben, zum Beispiel $\sigma^A_{n,\gamma}$. Summiert man die Wirkungsquerschnitte aller Reaktionen auf, bei denen die betreffenden Geschosse (zum Beispiel Neutronen) durch das Nuklid A absorbiert werden, so erhält man den Wirkungsquerschnitt σ^A_a (Absorptions- oder Einfangsquerschnitt). Entsprechend ist der Wirkungsquerschnitt σ^A_s für die Streuung definiert. Der totale Wirkungsquerschnitt (Gesamtwirkungsquerschnitt) σ^A_t ist die Summe aller partiellen Wirkungsquerschnitte σ^A_i des Nuklids A:

$$\sigma^A_t = \sum_i \sigma^A_i. \tag{8.62}$$

Er kann in einer einfachen Versuchsanordnung bestimmt werden, die in Abbildung (8–6) skizziert ist: Ein Strahlenbündel durchdringt das Target, das nur das Nuklid A enthält. Die Abnahme der Flußdichte Φ,

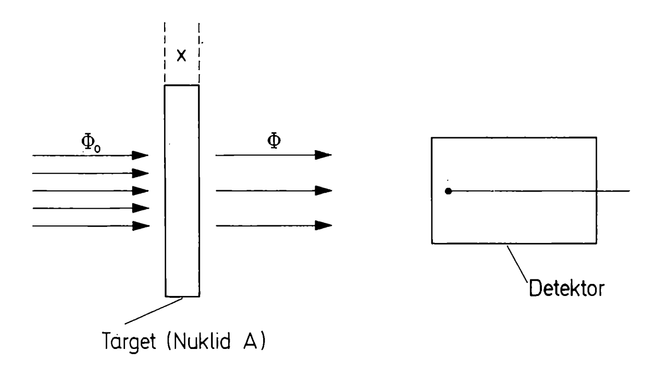


Abb. (8–6) Versuchsanordnung zur Bestimmung des Gesamtwirkungsquerschnitts σ_t^A.

die beispielsweise durch Aktivierung von sehr dünnen Folien bestimmt werden kann, ist ein Maß für den totalen Wirkungsquerschnitt. Beim Durchgang durch eine Schicht des Targets von der Dicke dx ändert sich die Flußdichte der Teilchen um den Betrag

$$-\mathrm{d}\Phi = \sigma_t^A \, \Phi \, N_A \, \mathrm{d}x. \tag{8.63}$$

N_A ist die Zahl der Atome des Nuklids A pro cm^3. Wenn die Änderung von σ_t^A innerhalb des Targets (z. B. infolge der Energieabhängigkeit von σ_t) vernachlässigt werden kann, liefert die Integration der Gl. (8.63)

$$\Phi = \Phi_0 \cdot e^{-\sigma_t^A N_A x}. \tag{8.64}$$

Daraus folgt

$$\sigma_t^A = \frac{\ln (\Phi_0/\Phi)}{N_A \cdot x}. \tag{8.65}$$

Sind außer dem Nuklid A noch andere Nuklide vorhanden, die ebenfalls zu Reaktionen befähigt sind, so gilt an Stelle von Gl. (8.63)

$$-\mathrm{d}\Phi = \Phi \sum_{\mathrm{j}} \sigma_{\mathrm{t}}^{\mathrm{j}} \cdot N_{\mathrm{j}}\,\mathrm{d}x. \tag{8.66}$$

In einem „dicken“ Target tritt eine merkliche Absorption der Geschoßteilchen ein. Diese muß für genaue Rechnungen entsprechend den Gln. (8.63) bis (8.66) berücksichtigt werden. In vielen praktischen Fällen genügt es jedoch, mit einem konstanten Mittelwert für die Flußdichte Φ zu rechnen und Gl. (8.60) zu verwenden; dies gilt insbesondere für „dünne“ Targets.

Die Summe, die in Gl. (8.66) auftritt, berücksichtigt alle Prozesse mit allen Nukliden des Targets. Betrachtet man einen bestimmten Prozeß i, dann bezeichnet man die Größe

$$\Sigma_{\mathrm{i}} = \sum_{\mathrm{j}} \sigma_{\mathrm{i}}^{\mathrm{j}} \cdot N_{\mathrm{j}} \tag{8.67}$$

als makroskopischen Wirkungsquerschnitt für den Prozeß i (Dimension cm^{-1}). So ist der makroskopische Wirkungsquerschnitt für die Absorption

$$\Sigma_{\mathrm{a}} = \sum_{\mathrm{j}} \sigma_{\mathrm{a}}^{\mathrm{j}} N_{\mathrm{j}} \tag{8.68}$$

oder, wenn das Target nur das Nuklid A enthält,

$$\Sigma_{\mathrm{a}} = \sigma_{\mathrm{a}}^{\mathrm{A}} \cdot N_{\mathrm{A}}. \tag{8.69}$$

Läßt man die Streuprozesse außer Betracht, so ist der makroskopische Wirkungsquerschnitt für die Absorption Σ_{a} gleich dem Absorptionskoeffizienten μ für die betreffenden Teilchen bzw. Strahlen. Berücksichtigt man Streuung und Absorption, so ist der Absorptionskoeffizient μ gegeben durch Σ_{t}, den totalen makroskopischen Wirkungsquerschnitt. Der makroskopische Wirkungsquerschnitt Σ_{i} für den Prozeß i ist gleich dem partiellen Absorptionskoeffizienten μ_{i} auf Grund dieses Prozesses.

Wenn nur Absorptionsvorgänge stattfinden, ist der Reziprokwert $\frac{1}{\Sigma_{\mathrm{a}}}$ gleich der mittleren freien Weglänge der Teilchen im Target. Beispielsweise berechnet man für die mittlere freie Weglänge von thermischen Neutronen in Wasser bis zur Absorption durch Wasserstoffatome

$$\frac{1}{\Sigma_a} = \frac{1}{\sigma_a^H \cdot N_H} \approx \frac{1}{0{,}33 \cdot 10^{-24}\,\text{cm}^2 \cdot 0{,}67 \cdot 10^{23}\,\text{cm}^{-3}} \approx 45\,\text{cm}. \quad (8.70)$$

Die Wirkungsquerschnitte hängen verhältnismäßig stark von der Energie der einfallenden Strahlung ab; d. h., die Wahrscheinlichkeit für den Ablauf einer bestimmten Kernreaktion ist eine Funktion der Energie, die von den Teilchen als kinetische Energie mitgebracht und als Anregungsenergie auf den Zwischenkern übertragen wird. Man bezeichnet die Energieabhängigkeit der Wirkungsquerschnitte deshalb auch als Anregungsfunktion („excitation function"). Beispiele für die Energieabhängigkeit von Wirkungsquerschnitten sind in den Abbn. (8–7) und (8–8) aufgezeichnet. In Abb. (8–7) ist der Wirkungsquerschnitt für den Neutroneneinfang des Silbers als Funktion der Energie der Neutronen dargestellt. Da die Neutronen keine Coulombsche Abstoßung erfahren, können sie im Bereich niedriger Energie mit hohem

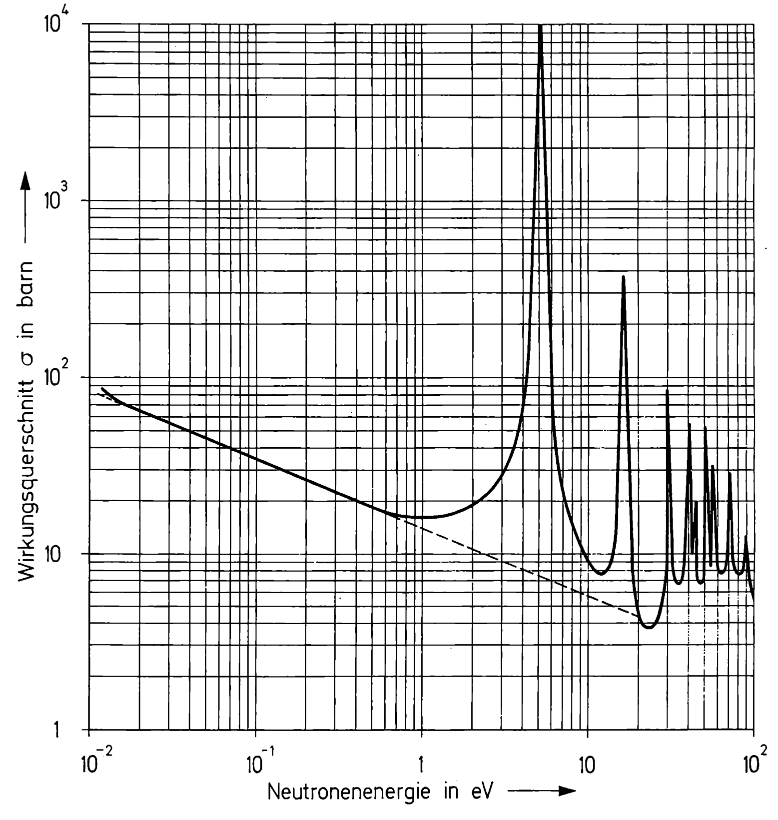


Abb. (8–7) Wirkungsquerschnitt für den Neutroneneinfang des Silbers als Funktion der Energie der Neutronen. Nach AECU–2040 and its supplement.

Wirkungsquerschnitt reagieren. Je höher die Geschwindigkeit der Neutronen ist, desto kürzere Zeit halten sie sich in der Nähe eines Kerns auf und desto geringer sollte der Wirkungsquerschnitt des Neutroneneinfangs sein; d. h., er sollte umgekehrt proportional zur Geschwindigkeit der Neutronen abfallen ($1/v$-Gesetz)

$$\sigma_{\mathrm{n}} \sim \frac{1}{v_{\mathrm{n}}}. \tag{8.71}$$

Diese Bedingung ist bei niedriger Energie weitgehend erfüllt, wie die Gerade in Abb. (8–7) anzeigt. Bei höherer Energie treten Maxima auf (Resonanzstellen). An diesen Resonanzstellen entspricht die kinetische Energie der Neutronen jeweils bestimmten bevorzugten Anregungsenergien; die Kernreaktion findet deshalb mit besonders guten Ausbeuten statt. In Abb. (8–8) ist der Wirkungsquerschnitt für einige

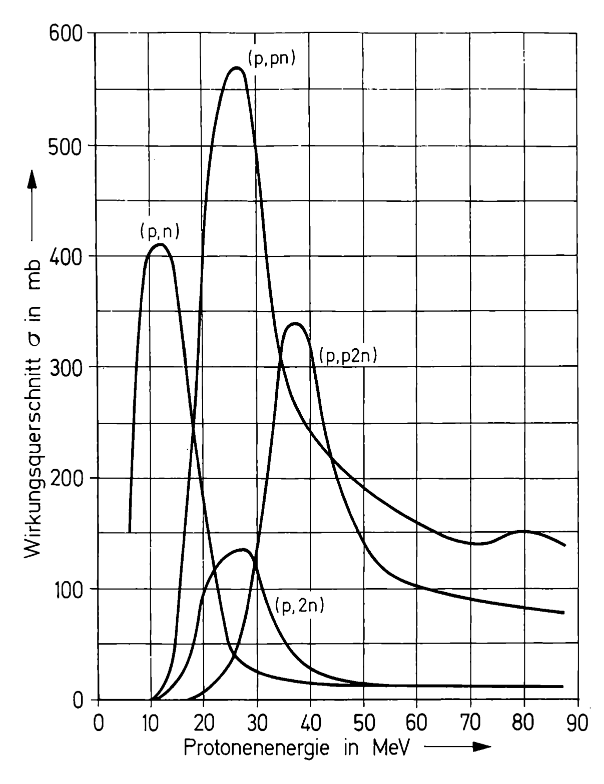


Abb. (8–8) Wirkungsquerschnitte für einige Kernreaktionen an Cu–63 mit Protonen als Funktion der Energie (Anregungsfunktionen). Nach J. W. MEADOWS: Physic. Rev. **91** (1953) 885.

durch Protonen an Cu–63 ausgelöste Reaktionen aufgezeichnet. Man erkennt aus dieser Abbildung, wie die einzelnen Reaktionen miteinander konkurrieren. Welche Reaktion vorherrscht, ist in hohem Maße von der Energie der Protonen abhängig.

Im einzelnen ergeben sich bei der Untersuchung von Kernreaktionen folgende Teilaufgaben:

1. Messung von Wirkungsquerschnitten als Funktion der Energie der Strahlung;
2. Messung der Spektren der Reaktionsprodukte (Teilchen und Produktkerne);
3. Messung der Winkelverteilung der Reaktionsprodukte.

Sehr nützlich bei diesen Experimenten ist die Verwendung von Auffängerfolien („catcher"). Bei dieser Technik (Abb. (8–9)) wird das Tar-

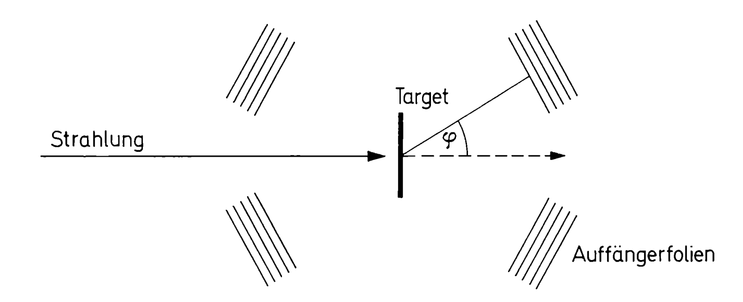


Abb. (8–9) Verwendung von Auffängerfolien bei der Untersuchung von Kernreaktionen (schematisch).

get auf beiden Seiten oder in bestimmten Winkeln zum einfallenden Strahl mit mehreren dünnen Folien umgeben, deren Schichtdicke kleiner ist als die Reichweite der Produktkerne. Die Produktkerne erfahren bei der Kernreaktion einen Rückstoß und gelangen so in die Auffängerfolien, die chemisch aufgearbeitet werden können. Die Verteilung der Produktkerne in den einzelnen Paketen von aufeinanderliegenden Folien ist somit ein Maß für die Energieverteilung. Genauere Angaben über die Energie sind möglich, wenn die Beziehung zwischen Energie und Reichweite bekannt ist.

8.7. Berechnung der Ausbeute

Die Ausbeute bei einer Kernreaktion läßt sich berechnen, wenn der Wirkungsquerschnitt σ und die Flußdichte Φ bekannt sind. Umgekehrt kann man die Flußdichte Φ einer Strahlung oder den Wirkungs-

querschnitt σ einer Kernreaktion bestimmen, wenn man die Ausbeute mißt. Wir gehen aus von der allgemeinen Gleichung für eine Kernreaktion

$$A + x \longrightarrow B + y. \tag{8.72}$$

Für die Bildungsrate des Nuklids B setzen wir an (Gl. (8.60)):

$$\frac{dN_B}{dt} = \sigma \cdot \Phi \cdot N_A; \tag{8.73}$$

N_A ist die Zahl der Atome des Nuklids A. Wir nehmen an, daß die Flußdichte Φ innerhalb des Targets konstant ist (dünnes Target); dann ist auch die Bildungsrate des Nuklids B an allen Stellen des Targets gleich. Außerdem setzen wir voraus, daß N_A konstant ist, d. h., daß sich die Zahl der Atome des Nuklids A infolge von Kernreaktionen nicht merklich ändert. Wenn das Nuklid B radioaktiv ist, müssen wir seine Zerfallsrate berücksichtigen

$$-\frac{dN_B}{dt} = \lambda \cdot N_B. \tag{8.74}$$

Die Nettobildungsrate (Bruttobildungsrate minus Zerfallsrate) beträgt dann

$$\frac{dN_B}{dt} = \sigma \cdot \Phi \cdot N_A - \lambda N_B. \tag{8.75}$$

Die Integration dieser Gleichung zwischen den Grenzen $t = 0$ und t liefert

$$N_{B(t)} = \frac{\sigma \cdot \Phi \cdot N_A}{\lambda}(1 - e^{-\lambda t}). \tag{8.76}$$

Dies ist die Zahl der Atome des Radionuklids B, die nach der Bestrahlungszeit t vorhanden ist. Die Aktivität des Nuklids B ist durch seine Zerfallsrate gegeben:

$$A = -\frac{dN_{B(t)}}{dt} = \lambda N_{B(t)} = \sigma \cdot \Phi \cdot N_A (1 - e^{-\lambda t}). \tag{8.77}$$

Nach dieser Gleichung erhalten wir die Aktivität in der Dimension s^{-1}. Für praktische Rechnungen ist es zweckmäßig, die Aktivität in Curie (1 Ci = $3{,}7 \cdot 10^{10}$ tps) anzugeben und auf 1 g einer Substanz zu beziehen. Die Zahl der Atome des Nuklids A in 1 g Substanz ist gegeben durch

$$N_{\mathrm{A}}(\text{in } 1\,\text{g}) = \frac{\mathrm{N_L}}{\mathrm{M}} \cdot H. \tag{8.78}$$

$\mathrm{N_L}$ ist die Loschmidtsche Zahl, M das Molekular- oder Atomgewicht der Substanz und H die Häufigkeit des Nuklids A in dem betreffenden Element. Damit folgt für die Aktivität pro Gramm Substanz (spezifische Aktivität A_{S})

$$A_{\mathrm{S}} = 1{,}63 \cdot 10^{13} \frac{\sigma \cdot \Phi \cdot H}{\mathrm{M}} (1 - e^{-\lambda t}) \left[\frac{\mathrm{Ci}}{\mathrm{g}}\right]. \tag{8.79}$$

Bei Aktivierungen in Reaktoren mit thermischen Neutronen ist es vorteilhaft, den Wirkungsquerschnitt in barn (1 b = 10^{-24} cm^2) einzusetzen und (zur Eliminierung der Zehnerpotenzen) den Faktor f für den Neutronenfluß einzuführen: $f = \Phi/10^{11}$. Dann erhält man die Beziehung

$$A_{\mathrm{S}} = \frac{1{,}63 \cdot \sigma \cdot f \cdot H}{\mathrm{M}} (1 - e^{-\lambda t}) \left[\frac{\mathrm{Ci}}{\mathrm{g}}, \sigma \text{ in barn}\right]. \tag{8.80}$$

Rechnet man mit der Halbwertzeit $t_{1/2}$, so gilt

$$A_{\mathrm{S}} = \frac{1{,}63 \cdot \sigma \cdot f \cdot H}{\mathrm{M}} \left(1 - \left(\frac{1}{2}\right)^{\frac{t}{t_{1/2}}}\right) \left[\frac{\mathrm{Ci}}{\mathrm{g}}, \sigma \text{ in barn}\right]. \tag{8.81}$$

Man erkennt aus dieser Gleichung, daß bei gegebener Flußdichte nach einer Bestrahlungsdauer von einer Halbwertzeit die Hälfte der maximal erreichbaren Aktivität erhalten wird. Mit wachsender Bestrahlungszeit nähert sich die Aktivität asymptotisch der Sättigungsaktivität (vgl. Abb. (8–10)). Bestrahlungszeiten, die größer sind als etwa 10 Halbwertzeiten des gebildeten Radionuklids, führen nicht mehr zu einer merklichen Erhöhung der Aktivität und sind deshalb sinnlos.

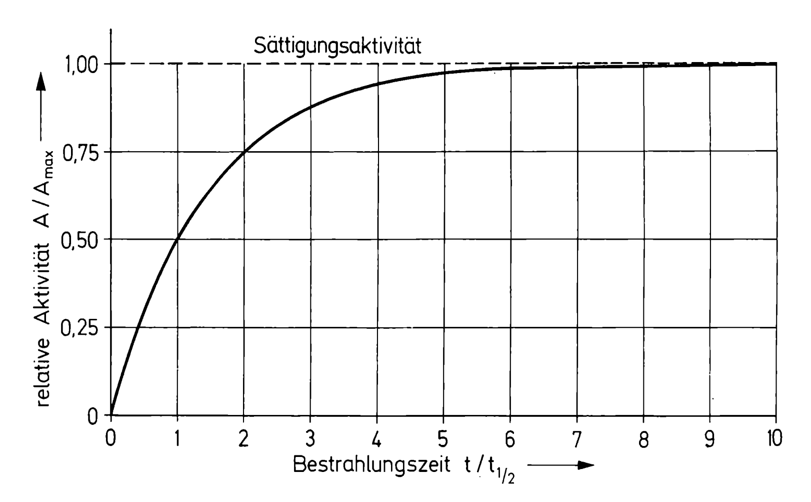


Abb. (8–10) Aktivität als Funktion der Bestrahlungszeit.

Der Umsatz bei einer Kernreaktion ist gegeben durch das Verhältnis $N_{B(t)}/N_A = \frac{\sigma \Phi}{\lambda}(1 - e^{-\lambda t})$; dies folgt aus Gl. (8.76). Er ist umso höher, je größer das Verhältnis $\sigma \Phi/\lambda$ und je kleiner $e^{-\lambda t}$ sind. Für die Herstellung größerer Mengen eines Radionuklids ist deshalb das Verhältnis $\sigma \Phi/\lambda$ von entscheidender Bedeutung. Dies ergibt sich auch aus Gl. (8.75): Die Nettobildungsrate ist nur dann positiv, wenn $\sigma \Phi > \lambda \frac{N_B}{N_A}$ ist. Soll $N_B \approx N_A$ werden, so muß $\sigma \Phi > \lambda$ sein. Da die Werte für σ und λ gegeben sind, kommt es in erster Linie auf die Flußdichte Φ an.

Zur Erläuterung sollen drei praktische Beispiele von Aktivierungen behandelt werden:

1. Aktivierung von Kupfer durch Bestrahlung in einem Kernreaktor (Neutronenfluß $\Phi = 10^{12}\,\mathrm{cm^{-2}\,s^{-1}}$, Bestrahlungszeit 1 Tag). Das natürliche Kupfer besteht aus zwei Isotopen, Cu–63 (Häufigkeit 69,09%) und Cu–65 (Häufigkeit 30,91%). Durch Neutroneneinfang entsteht aus Cu–63 das Cu–64

$$^{63}\mathrm{Cu}\,(\mathrm{n},\gamma)\,^{64}\mathrm{Cu} \quad (\sigma = 4{,}51\,\mathrm{b}) \tag{8.82}$$

und aus Cu–65 das Cu–66

$$^{65}\mathrm{Cu}\,(\mathrm{n},\gamma)\,^{66}\mathrm{Cu} \quad (\sigma = 2{,}3\,\mathrm{b}). \tag{8.83}$$

Die Halbwertzeit des Cu–64 beträgt 12,8 h, die des Cu–66 5,1 min. Aus Gl. (8.81) folgt

$$A_S(\text{Cu–64}) = \frac{1{,}63 \cdot 4{,}51 \cdot 10 \cdot 0{,}6909}{63{,}54}\left[1 - \left(\frac{1}{2}\right)^{24/12{,}8}\right] = 0{,}581\ \text{Ci/g}$$

und

$$A_S(\text{Cu–66}) = \frac{1{,}63 \cdot 2{,}3 \cdot 10 \cdot 0{,}3091}{63{,}54}\left[1 - \left(\frac{1}{2}\right)^{1440/5{,}1}\right] = 0{,}182\ \text{Ci/g}.$$

2. Gewinnung von C–14 durch Bestrahlung von AlN in einem Kernreaktor (Neutronenfluß $\Phi = 10^{12}\ \text{cm}^{-2}\ \text{s}^{-1}$, Bestrahlungszeit 1 Jahr). Der natürliche Stickstoff besteht zu 99,65% aus N–14. Hier interessiert nur die Kernreaktion

$$^{14}\text{N}(\text{n, p})\,^{14}\text{C} \quad (\sigma = 1{,}81\ \text{b}). \tag{8.84}$$

Die Halbwertzeit des C–14 beträgt 5730 a. Für die spezifische Aktivität des AlN berechnet man nach Gl. (8.81)

$$A_S(\text{C–14}) = \frac{1{,}63 \cdot 1{,}81 \cdot 10 \cdot 0{,}9965}{40{,}99}\left[1 - \left(\frac{1}{2}\right)^{1/5730}\right] = 86{,}1\ \mu\text{Ci/g}.$$

Diese Aktivität ist verhältnismäßig niedrig. Der Ausdruck in der Klammer beträgt $1{,}210 \cdot 10^{-4}$ (für solche kleinen Werte von $\frac{t}{t_{1/2}}$, d. h. $\frac{t}{t_{1/2}} < 0{,}001$, rechnet man zweckmäßigerweise nach der Näherungsformel $1 - \left(\frac{1}{2}\right)^{t/t_{1/2}} \approx \frac{t}{t_{1/2}} \ln 2$).

Im Falle der Herstellung von C–14 wird auch nach der verhältnismäßig langen Bestrahlungszeit von 1 Jahr nur ein kleiner Bruchteil der Sättigungsaktivität erreicht.

3. Gewinnung von Tritium durch Bestrahlung von Lithium in einem Kernreaktor (Neutronenfluß $\Phi = 10^{12}\,\text{cm}^{-2}\,\text{s}^{-1}$, Bestrahlungszeit 1 Jahr). Das natürliche Lithium besteht aus zwei Isotopen, Li–6 (Häufigkeit 7,42%) und Li–7 (Häufigkeit 92,58%). Bei diesem Beispiel interessiert nur die Kernreaktion

$$^{6}\text{Li}(\text{n}, \alpha)\,\text{t} \quad (\sigma = 953\ \text{b}). \tag{8.85}$$

Die Halbwertzeit des Tritium beträgt 12,26 a. Für die Ausbeute an Tritium erhält man nach Gl. (8.81)

$$A_S(\mathrm{T}) = \frac{1{,}63 \cdot 953 \cdot 10 \cdot 0{,}0742}{6{,}94}\left[1 - \left(\frac{1}{2}\right)^{1/12{,}26}\right] = 9{,}13\ \mathrm{Ci/g}.$$

Am Anfang dieses Abschnittes hatten wir angenommen, daß die Flußdichte der Teilchen innerhalb des Targets konstant ist. Wenn eine merkliche Absorption der Strahlen im Target stattfindet (dicke Targets), so kann man mit der mittleren Flußdichte Φ_m rechnen, die sich aus Gl. (8.63) bzw. (8.65) ermitteln läßt (vgl. Abb. (8–11)). Für ein plat-

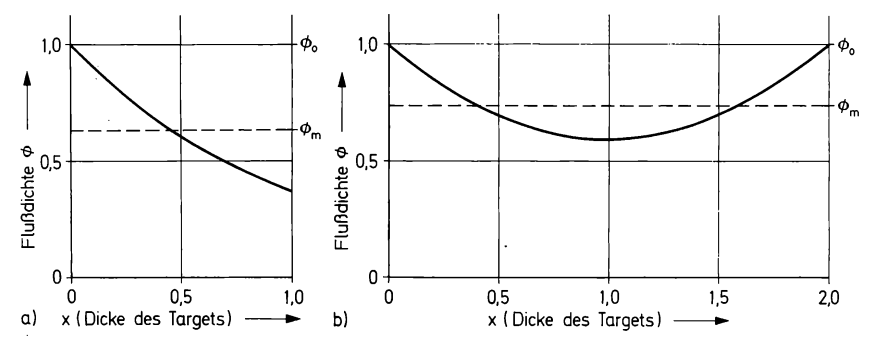


Abb. (8–11) Flußdichte in einem „dicken" Target a) bei einem aus einer Richtung einfallenden Strahl, b) in einem Strahlenfeld.

tenförmiges Target (Schichtdicke x bzw. $2x$) erhält man

$$\Phi_m = \frac{1}{x}\int_0^x \Phi\,\mathrm{d}x = \frac{\Phi_0}{x}\int_0^x e^{-\Sigma_t x}\,\mathrm{d}x = \frac{\Phi_0}{\Sigma_t x}(1 - e^{-\Sigma_t x}). \quad (8.86)$$

Σ_t ist der totale makroskopische Wirkungsquerschnitt.

Wir behandeln nun noch einige etwas kompliziertere, aber ebenfalls praktisch wichtige Beispiele für die Berechnung der Ausbeute von Kernreaktionen. Zunächst wollen wir den Fall betrachten, daß sich während der Bestrahlung aus dem Reaktionsprodukt durch Zerfall ein weiteres Radionuklid bildet, wie es in der folgenden Gleichung angegeben ist:

$$(\mathrm{A}) \xrightarrow[\text{Kernreaktion}]{\text{binukleare}} (1) \xrightarrow{\text{Zerfall}} (2) \quad (8.87)$$

Gesucht ist die Zahl der Atome des Nuklids (2), die während der Bestrahlungszeit t gebildet wird. Die Nettobildungsrate von (2) ist gleich der Zerfallsrate von (1), abzüglich der Zerfallsrate von (2)

$$\frac{dN_2}{dt} = \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2 \tag{8.88}$$

(vgl. Gl. (5.27)). Das Nuklid (1) entsteht durch eine binukleare Kernreaktion aus dem Nuklid A; die Anwendung von Gl. (8.76) führt zu der Gleichung

$$\frac{dN_2}{dt} = \sigma \Phi N_A (1 - e^{-\lambda_1 t}) - \lambda_2 N_2. \tag{8.89}$$

Wir setzen voraus, daß N_A konstant ist und zur Zeit $t = 0$ sowohl $N_1 = 0$ als auch $N_2 = 0$ sind; dann erhalten wir durch Integration

$$N_2 = \sigma \Phi N_A \left[\frac{1 - e^{-\lambda_2 t}}{\lambda_2} + \frac{e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}}{\lambda_1 - \lambda_2}\right]. \tag{8.90}$$

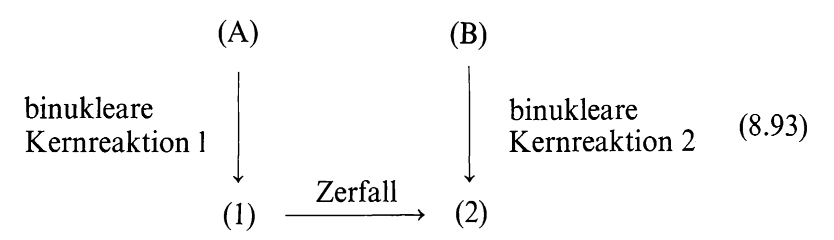
Nach Beendigung der Bestrahlung wandelt sich zwar weiterhin das Nuklid (1) in das Nuklid (2) um, (1) wird aber nicht mehr durch die Kernreaktion aus A nachgebildet. Wir müssen deshalb unterscheiden zwischen der Bestrahlungszeit t_b und der Abklingzeit t_a nach Bestrahlungsende und erhalten unter Berücksichtigung von Gl. (5.31)

$$N_2 = \sigma \Phi N_A \left[\frac{1 - e^{-\lambda_2 t_b}}{\lambda_2} + \frac{e^{-\lambda_1 t_b} - e^{-\lambda_2 t_b}}{\lambda_1 - \lambda_2}\right] e^{-\lambda_2 t_a} + \frac{\lambda_1}{\lambda_2 - \lambda_1} N_1^0 (e^{-\lambda_1 t_a} - e^{-\lambda_2 t_a}). \tag{8.91}$$

N_1^0 ist die Zahl der Atome des Nuklids (1) nach Bestrahlungsende. Setzen wir diese nach Gl. (8.76) ein, so folgt

$$N_2 = \sigma \Phi N_A \left[\frac{1 - e^{-\lambda_2 t_b}}{\lambda_2} + \frac{e^{-\lambda_1 t_b} - e^{-\lambda_2 t_b}}{\lambda_1 - \lambda_2}\right] e^{-\lambda_2 t_a} + \frac{\sigma \Phi N_A}{\lambda_2 - \lambda_1} (1 - e^{-\lambda_1 t_b}) (e^{-\lambda_1 t_a} - e^{-\lambda_2 t_a}). \tag{8.92}$$

Ziehen wir die Möglichkeit in Betracht, daß sich das Nuklid (2) zusätzlich auch direkt durch eine Kernreaktion aus einem anderen Nuklid B bildet, so gilt das Reaktionsschema



(8.93)

Für die Zahl der Atome des Nuklids (2), die am Ende der Bestrahlung vorliegt, erhalten wir an Stelle von Gl. (8.90)

$$N_2 = \sigma_2 \Phi_2 N_B \frac{1 - e^{-\lambda_2 t}}{\lambda_2} + \sigma_1 \Phi_1 N_A \left[\frac{1 - e^{-\lambda_2 t}}{\lambda_2} + \frac{e^{-\lambda_1 t} - e^{-\lambda_2 t}}{\lambda_1 - \lambda_2} \right] \tag{8.94}$$

Dabei ist angenommen, daß N_A und N_B konstant und zur Zeit $t = 0$ sowohl $N_1 = 0$ als auch $N_2 = 0$ sind.

Bei der Ableitung der Gln. (8.76), (8.90) und (8.94) hatten wir vorausgesetzt, daß die Zahl N_A der im Target vorhandenen Atome des Nuklids A als konstant angesehen werden kann. Diese Voraussetzung ist nicht erfüllt, wenn sich N_A durch Kernreaktionen und durch radioaktiven Zerfall in merklichem Umfang ändert. Wir müssen dann ansetzen

$$-\frac{dN_A}{dt} = \lambda N_A + \sigma \Phi N_A = (\lambda + \sigma \Phi) N_A = \Lambda N_A. \tag{8.95}$$

In dieser Gleichung ist zur Abkürzung $\lambda + \sigma\Phi = \Lambda$ eingeführt; d. h., der Einfluß der mononuklearen und der binuklearen Kernreaktionen ist in einer Konstanten zusammengefaßt. Durch Integration erhalten wir in Analogie zu Gl. (5.8)

$$N_A = N_A^0 e^{-\Lambda t}. \tag{8.96}$$

Erweitern wir diese Betrachtung auf eine Gruppe von Nukliden, die in genetischem Zusammenhang stehen,

$$\begin{array}{ccccc} (1) & \xrightarrow{\text{Zerfall}} & (2) & \xrightarrow{\text{Zerfall}} & (3) \\ \Big\downarrow \begin{array}{l}\text{binukleare}\\ \text{Kernreaktion 1}\end{array} & & \Big\downarrow \begin{array}{l}\text{binukleare}\\ \text{Kernreaktion 2}\end{array} & & \end{array}, \tag{8.97}$$

so gilt für das Nuklid (2)

$$\frac{dN_2}{dt} = \lambda_1 N_1 - \lambda_2 N_2 - \sigma_2 \Phi_2 N_2 = \lambda_1 N_1 - \Lambda_2 N_2. \tag{8.98}$$

Unter Berücksichtigung von Gl. (8.96) folgt

$$\frac{dN_2}{dt} = \lambda_1 N_1^0 e^{-\Lambda_1 t} - \Lambda_2 N_2. \tag{8.99}$$

Diese Differentialgleichung entspricht Gl. (5.29). Die Lösung lautet für die Anfangsbedingung $N_2 = 0$

$$N_2 = \frac{\lambda_1}{\Lambda_2 - \Lambda_1} N_1^0 (e^{-\Lambda_1 t} - e^{-\Lambda_2 t}). \tag{8.100}$$

Wir gehen nun noch einen Schritt weiter und betrachten den Fall, daß die Radionuklide (1) bzw. (2) nicht nur durch Zerfall, sondern auch durch binukleare Kernreaktionen aus den vorausgehenden Nukliden entstehen, wie dies in dem folgenden Schema angegeben ist:

$$\begin{array}{ccccc} & \text{Zerfall} & & \text{Zerfall} & \\ (1) & \rightrightarrows & (2) & \rightrightarrows & (3) \\ \Bigg\downarrow & \begin{array}{c}\text{binukleare}\\ \text{Kernreaktion}\\ 12\end{array} & \Bigg\downarrow & \begin{array}{c}\text{binukleare}\\ \text{Kernreaktion}\\ 23\end{array} & \\ \begin{array}{l}\text{binukleare}\\ \text{Kernreaktion 1}\end{array} & & \begin{array}{l}\text{binukleare}\\ \text{Kernreaktion 2}\end{array} & & \end{array} \tag{8.101}$$

Dann gilt für die Nettobildungsrate des Nuklids (2)

$$\frac{dN_2}{dt} = \lambda_1 N_1 + \sigma_{12} \Phi_{12} N_1 - \lambda_2 N_2 - \sigma_2 \Phi_2 N_2 - \sigma_{23} \Phi_{23} N_2 \tag{8.102}$$

bzw.

$$\frac{dN_2}{dt} = \Lambda_1^* N_1 - \Lambda_2 N_2. \tag{8.103}$$

Nach Gl. (8.96) ist

$$N_1 = N_1^\circ e^{-\Lambda_1 t}. \tag{8.104}$$

Man beachte, daß Λ_1^* und Λ_1 nicht identisch sind. Für das Reaktionsschema (8.101) gilt

$$\Lambda_1^* = \lambda_1 + \sigma_{12}\Phi_{12} \tag{8.105}$$

$$\Lambda_1 = \lambda_1 + \sigma_1\Phi_1 + \sigma_{12}\Phi_{12}; \tag{8.106}$$

In Λ_1^* sind nur diejenigen Kernreaktionen berücksichtigt, die zur Bildung des Nuklids (2) aus dem Nuklid (1) führen, in Λ_1 aber alle Kernreaktionen, die eine Abnahme von N_1 bewirken.

Erweitert man diese Betrachtung, so kann man allgemein für ein beliebiges Nuklid i in einer Kette von Umwandlungen ansetzen

$$\frac{dN_i}{dt} = \Lambda_{i-1}^* N_{i-1} - \Lambda_i N_i. \tag{8.107}$$

Diese Differentialgleichung hat die gleiche Form wie die Gln. (5.59) in Abschn. 5.12. Die allgemeine Lösung lautet für die Anfangsbedingungen $N_1 = N_1^\circ$, $N_2^\circ = N_3^\circ = \ldots = N_n^\circ = 0$:

$$N_n(t) = C_1 e^{-\Lambda_1 t} + C_2 e^{-\Lambda_2 t} + \ldots + C_n e^{-\Lambda_n t}. \tag{8.108}$$

Die Koeffizienten C_i entsprechen den Koeffizienten c_i in den Gln. (5.62):

$$C_1 = \frac{\Lambda_1^* \Lambda_2^* \ldots \Lambda_{n-1}^*}{(\Lambda_2 - \Lambda_1)(\Lambda_3 - \Lambda_1) \ldots (\Lambda_n - \Lambda_1)} N_1^\circ \tag{8.109}$$

usw.

Entsprechend dem oben Gesagten gilt, daß in den Λ_i alle Terme enthalten sind, die zur Abnahme des Nuklids i führen, in den Λ_i^* aber nur die Terme, die zur Bildung des folgenden Nuklids i + 1 in der Reaktionskette führen. Die Gleichungen sind für alle Ausbeuteberechnungen anwendbar.

8.8. Kernspaltung

Wie bereits in Abschnitt 7.1.4. erwähnt, sind die schwereren Kerne instabil im Hinblick auf Spaltung. Die Spontanspaltung tritt aber erst bei verhältnismäßig großen Massenzahlen in den Vordergrund. Durch Einwirkung geeigneter Strahlen auf schwere Nuklide kann die Spaltung der Atomkerne ausgelöst werden. Diese „künstliche" Spaltung wird kurz als Kernspaltung bezeichnet. Bei Ordnungszahlen oberhalb von etwa $Z = 90$ ist sie in vielen Fällen die bevorzugte Kernreaktion.

Die Möglichkeit, Atomkerne künstlich zu spalten, wurde erstmals 1938 von den Chemikern O. HAHN und F. STRASSMANN entdeckt, und zwar bei dem Versuch, Transuranelemente durch Einwirkung von Neutronen auf Uran herzustellen. Dabei fanden sie Radionuklide, die erheblich leichter waren als Uran und deshalb nur durch eine Kernspaltung entstanden sein konnten.

Die Kurzschreibweise für die Kernspaltung ist (x, f); f steht für „fission". Zum Beispiel bedeutet die Gleichung

$$\mathrm{U}\,(\mathrm{n},\mathrm{f})\;{}^{140}\mathrm{Ba}, \qquad (8.110)$$

daß bei der Kernspaltung des Urans mit Neutronen Ba–140 entsteht. Als Geschosse x für die Kernspaltung kommen in Frage: Neutronen, Protonen, Deuteronen und α-Teilchen.

Zweckmäßigerweise unterscheidet man zwischen Niederenergie-Kernspaltung und Hochenergie-Kernspaltung. Von Niederenergie-Kernspaltung spricht man, wenn die Geschosse, welche die Kernreaktion auslösen, eine Energie bis zu etwa 10 MeV besitzen. Am wichtigsten ist die Kernspaltung mit thermischen Neutronen (thermische Kernspaltung), die als Kettenreaktion in Kernreaktoren abläuft. Da die thermische Kernspaltung große praktische und theoretische Bedeutung besitzt, wird sie in diesem Abschnitt ausführlicher behandelt.

In Anlehnung an die allgemeine Gleichung für eine Kernreaktion (Gl. (8.2)) können wir die Niederenergie-Kernspaltung mit Neutronen folgendermaßen formulieren

$$\mathrm{A} + \mathrm{n} \longrightarrow \mathrm{B} + \mathrm{D} + \nu \cdot \mathrm{n} + \Delta E. \qquad (8.111)$$

Durch Spaltung des schweren Nuklids A entstehen zwei mittelschwere Nuklide B und D und außerdem mehrere Neutronen ($\nu = 2{,}4$ bei der

Spaltung des U–235 und $\nu = 2{,}9$ bei der Spaltung des Pu–239); die Energie ΔE wird frei. Diese Energie ist verhältnismäßig groß ($\Delta E \approx 200$ MeV), da die Bindungsenergie pro Nukleon für mittelschwere Kerne höher ist als für schwere Kerne (vgl. Abb. (1–11)). Darauf basiert die Energieproduktion in den Kernreaktoren.

Tabelle 8.2.
Wirkungsquerschnitte für die Kernspaltung mit thermischen Neutronen

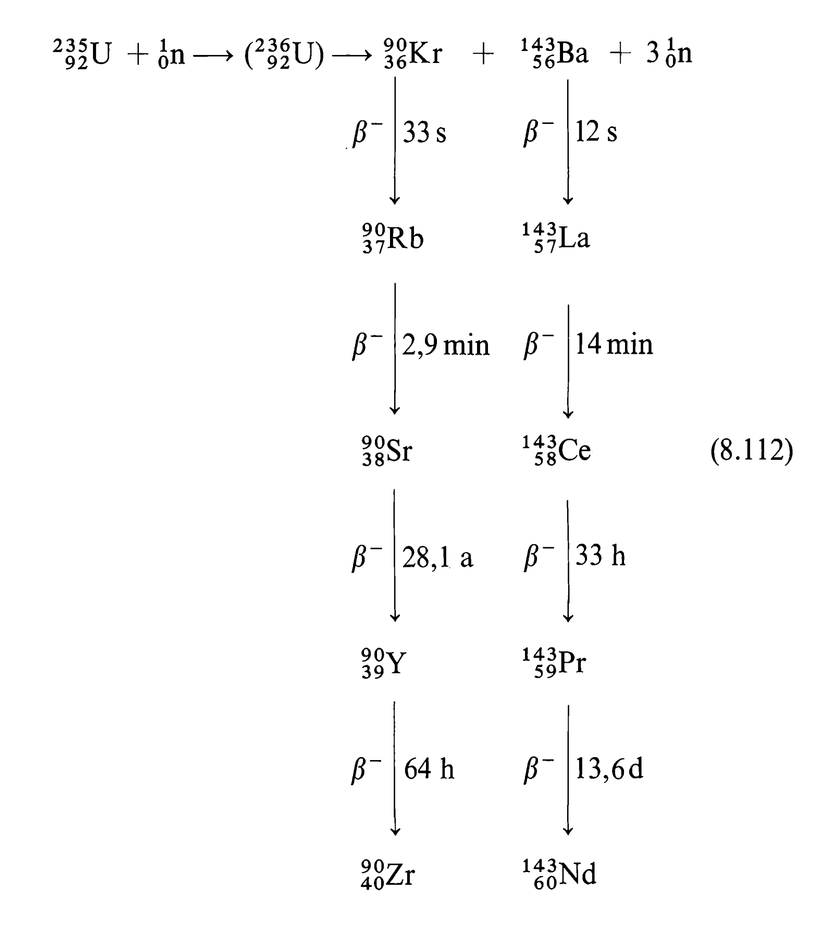
Nuklid	$\sigma_{n,f}$ in barn (Energie der Neutronen 0,025 eV)	Nuklid	$\sigma_{n,f}$ in barn (Energie der Neutronen 0,025 eV)
Th–227	$\approx$ 1500	Pu–236	170
228	< 0,3	237	2500
229	32	238	16,8
230	≤ 0,001	239	741
232	< 0,0002	240	< 0,08
233	15	241	950
234	< 0,001	242	< 0,2
Pa–230	1500	Am–241	3,0
231	0,010	242	2900
232	$\approx$ 700	242m	6000
233	< 0,1	243	< 0,07
234	< 5000	244	2300
234m	< 500		
		Cm–242	< 5
U–230	25	243	660
231	$\approx$ 400	245	1900
232	77		
233	524	Cf–249	1735
235	577	250	< 350
238	< 0,0005	251	3000
239	14		
Np–234	$\approx$ 900		
236	2500		
237	0,019		
238	1600		
239	< 1		

Einige Nuklide sind mit thermischen Neutronen besonders leicht – d. h. mit großem Wirkungsquerschnitt – spaltbar, z. B. U–233 ($\sigma_{n,f} = 524$ b), U–235 ($\sigma_{n,f} = 577$ b) und Pu–239 ($\sigma_{n,f} = 741$ b). Diese Nu-

klide besitzen eine besonders große praktische Bedeutung, weil sie infolge der hohen Wirkungsquerschnitte $\sigma_{n,f}$ die Durchführung einer Kettenreaktion ermöglichen, wobei durch die entstehenden Neutronen immer wieder neue Kernspaltungen ausgelöst werden. Auf dieser Grundlage beruht die Entwicklung von Kernreaktoren und Atombomben. Die Radionuklide U–233, U–235 und Pu–239 werden deshalb als Kernbrennstoffe bezeichnet. In Tab. 8.2. sind die Wirkungsquerschnitte einiger Nuklide für die Spaltung mit thermischen Neutronen zusammengestellt. Der Wirkungsquerschnitt für die Spaltung hängt sehr stark von der Energie der Teilchen ab. Mit energiereichen Neutronen, Protonen, Deuteronen und α-Teilchen ist es auch möglich, andere schwere Kerne zu spalten.

Den Ablauf der Kernspaltung durch thermische Neutronen kann man sich ähnlich vorstellen wie die Spontanspaltung (vgl. Abb. (7–28)). Der Spaltvorgang wird durch Einfangen eines Neutrons wesentlich beschleunigt; die Bindungsenergie des eingefangenen Neutrons verteilt sich als Anregungsenergie auf den Kern, der sich infolgedessen ziemlich stark deformiert und mit sehr hoher Wahrscheinlichkeit in zwei Spaltstücke und einige Neutronen zerfällt. Die Zeitspanne zwischen der Absorption des Neutrons und der Spaltung beträgt etwa 10^{-13} s. Ein kleiner Bruchteil der frei werdenden Neutronen wird erst nach einer gewissen Verzögerungszeit emittiert, die zwischen 0,1 und 0,6 s liegt; der Bruchteil dieser verzögerten Neutronen beträgt bei der Spaltung des U–233 0,0026, für U–235 0,0065 und für Pu–239 0,0021.

Ein wichtiges Charakteristikum der thermischen Kernspaltung ist, daß bevorzugt unsymmetrische Spaltstücke entstehen, die einen hohen Neutronenüberschuß besitzen und durch β^--Zerfall in stabile Nuklide übergehen. Beispielsweise können bei der Spaltung des U–235 folgende Spaltketten auftreten:



Als „Spaltkette" bezeichnet man eine bei der Kernspaltung entstehende Reihe von isobaren Nukliden, die sich durch β^--Zerfall in Richtung auf die Linie der β-Stabilität umwandeln.

Der hohe Neutronenüberschuß der Spaltstücke rührt von dem Neutronenüberschuß der schweren Kerne her. Dies ist in Abb. (8–12) veranschaulicht. Die Zahl der Möglichkeiten bei der Kernspaltung ist sehr groß. Da sich bei den β-Umwandlungen die Massenzahl nicht ändert, ist es sinnvoll, die Spaltausbeute als Funktion der Massenzahl aufzutragen; dabei wird jede Spaltkette durch Angabe einer Spaltausbeute charakterisiert. Für die Spaltung des U–235 durch thermische Neutronen erhält man die in Abb. (8–13) aufgezeichnete Kurve. Die Spaltausbeute gibt an, in wieviel Prozent der Kernspaltungen Nuklide mit der betreffenden Massenzahl entstehen. Da aus einer Kernspaltung jeweils zwei Spaltstücke hervorgehen, beträgt die Summe der Spaltausbeuten, über alle Massenzahlen aufsummiert, 200%.

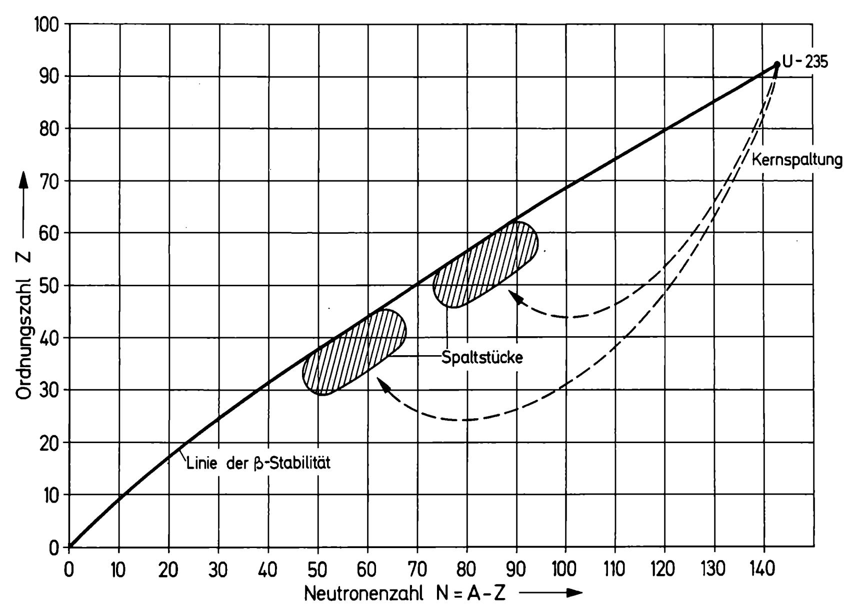


Abb. (8–12) Neutronenüberschuß der Spaltstücke bei der Kernspaltung (schematisch).

In Abb. (8–13) ist der Logarithmus der Spaltausbeute aufgetragen. Man erkennt daraus, wie stark die asymmetrische Spaltung bevorzugt ist. Die Maxima der Kurve liegen in der Nähe der Massenzahlen A = 95 und A = 138. Die Ausbeuten für diese Massenzahlen betragen jeweils etwa 7%. Eine symmetrische Spaltung (A = 236/2) findet nur in 10^{-2} % aller Fälle statt. Bei der Spaltung des U–233 und des Pu–239 erhält man ähnliche Spaltausbeuten (Abb. (8–14)). Die Maxima liegen für die Spaltung des Pu–239 bei etwa A = 99 und A = 140. Das Minimum der Spaltausbeute beträgt etwa $4 \cdot 10^{-2}$ %. Die Feinstruktur in den Kurven für die Spaltausbeute wird auf die Schalenstruktur der Atomkerne zurückgeführt.

Mit der Aufzeichnung der Spaltausbeute als Funktion der Massenzahl (Massendispersion) sind die Angaben über die Kernspaltung noch nicht vollständig. Es interessiert noch die Ausbeute der primär gebildeten Spaltstücke einer isobaren Reihe als Funktion der Ordnungszahl (Ladungsdispersion, Abb. (8–15)). Die Bestimmung dieser Werte ist erheblich schwieriger. Durch rasche radiochemische Trennungen nach kurzer Bestrahlungszeit kann die Ladungsdispersion für die Nuklide ermittelt werden, die in der „Spaltkette“ auf ein langlebigeres Nuklid folgen. Die Spaltausbeute der sogenannten geschützten Nuklide ist direkt meßbar. Geschützte Nuklide sind solche, die in einer

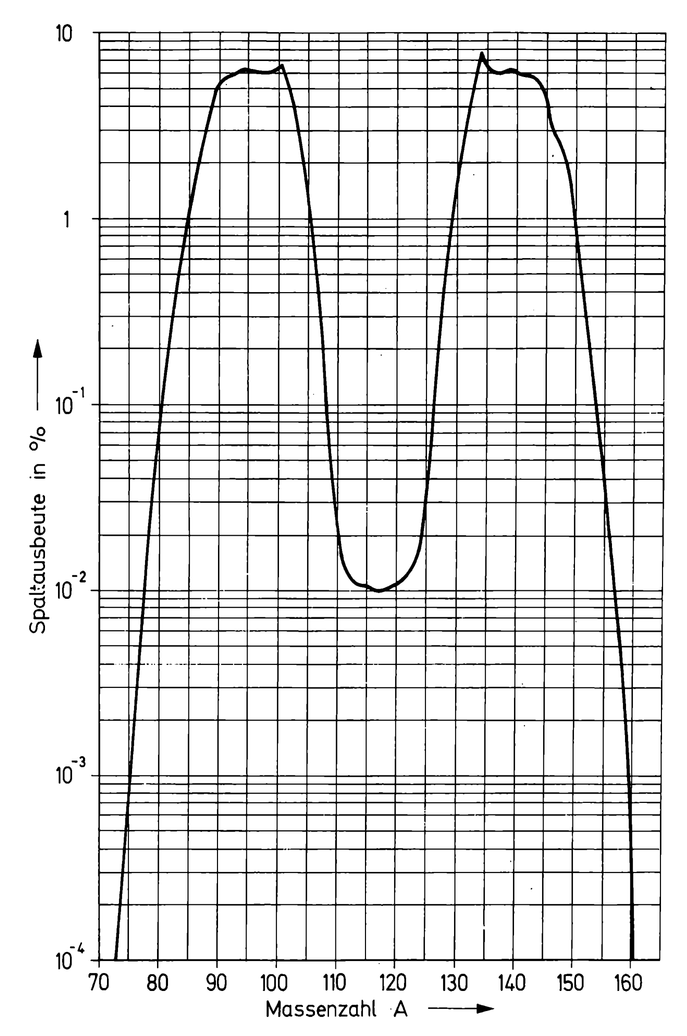


Abb. (8–13) Spaltausbeute für die Spaltung des U–235 durch thermische Neutronen. Nach AECl–1054.

isobaren Reihe hinsichtlich ihrer Ordnungszahl auf ein stabiles Nuklid folgen. Sie können deshalb bei der Kernspaltung nicht durch β^--Umwandlung aus isobaren Nukliden niedrigerer Ordnungszahl entstehen. Man unterscheidet die unabhängige Spaltausbeute und die kumulative Spaltausbeute; letztere ist gegeben durch die unabhängige Spaltausbeute des betreffenden Nuklids, zuzüglich der durch β^--Umwandlung aus den vorangehenden Isobaren mit niedrigeren Ordnungszahlen gebildeten Menge. Die Summe der Ausbeute an allen Isobaren bezeichnet man als Isobarenausbeute; diese ist gleich der in den Abbn.

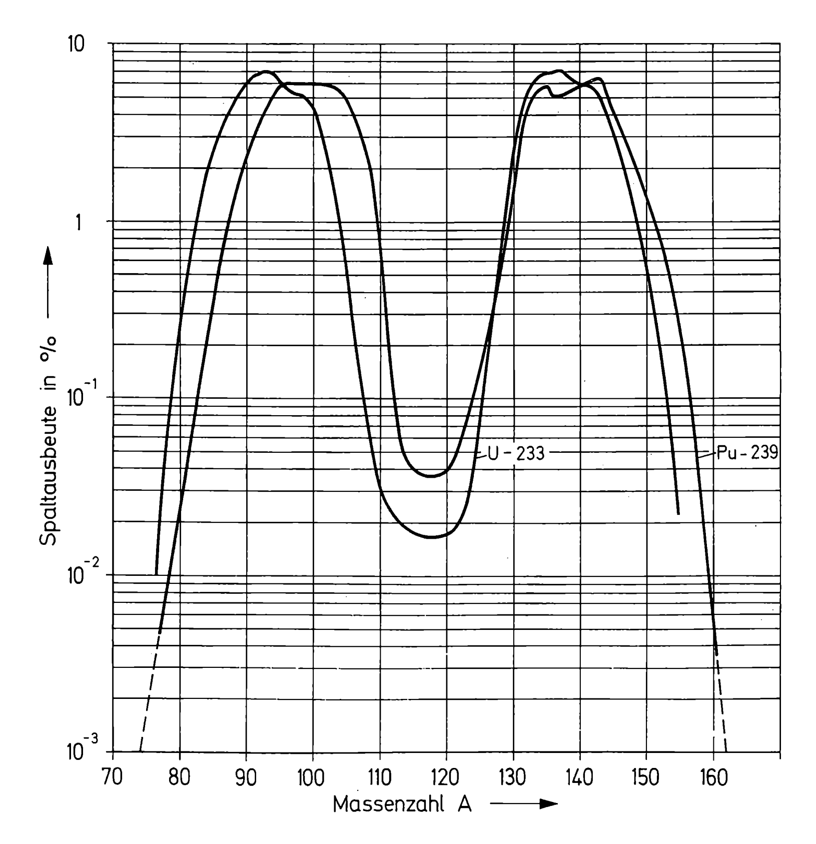


Abb. (8–14) Spaltausbeute für die Spaltung des U–233 und Pu–239 durch thermische Neutronen. Nach S. KATCOFF: Nucleonics [New York] **16**/4 (1958) 78.

(8–13) und (8–14) aufgezeichneten Spaltausbeute. Die unabhängigen Spaltausbeuten einer Isobarenreihe sind nur in wenigen Fällen bekannt. Die wahrscheinlichste Ordnungszahl Z_p ist um etwa 3 bis 4 Einheiten geringer als die stabilste Ordnungszahl Z_A der jeweiligen Isobarenreihe. Z_A kann aus Gl (1.8) berechnet werden. Etwa 50% der Gesamtausbeute entfällt auf die Ordnungszahl Z_p, je etwa 25% auf die Ordnungszahlen $Z = Z_p \pm 1$, und je etwa 2% auf $Z = Z_p \pm 2$ (vgl. Abb. (8–15)). Für höhere bzw. niedrigere Ordnungszahlen ist die Ausbeute sehr gering. Dieser Befund stimmt recht gut überein mit der Hypothese der gleichen Ladungsverschiebung. Diese besagt, daß in den beiden Spaltstücken die Differenz $Z_A - Z_p$ gleich ist und daß außerdem die Ladungsdispersion für alle Massenzahlen gleich ist. Da bei der Spaltung des U–235 im Mittel 2,4 Neutronen emittiert werden, ist in diesem Falle

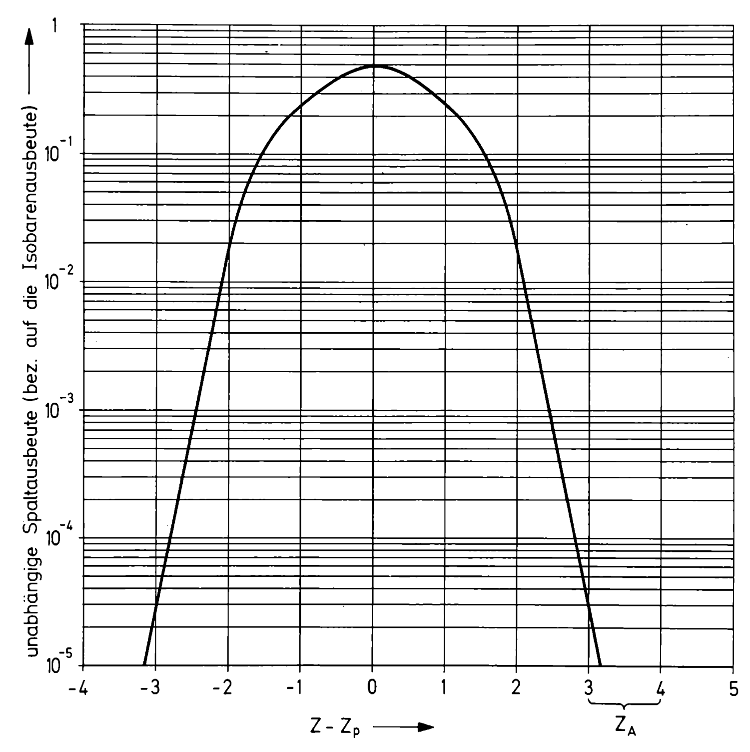


Abb. (8–15) Unabhängige Spaltausbeute für die Spaltung von U–235 mit thermischen Neutronen.

$$Z_A - Z_p = Z_{233,6-A} - (92 - Z_p) \tag{8.113}$$

bzw.

$$Z_p = 46 + \frac{1}{2}(Z_A - Z_{233,6-A}). \tag{8.114}$$

Das Bild der Kernspaltung ändert sich erheblich, wenn Neutronen oder andere Geschosse höherer Energie verwendet werden (Hochenergie-Kernspaltung). Dann wird dem Kern so viel Anregungsenergie zugeführt, daß die Wahrscheinlichkeit für eine symmetrische Spaltung zunimmt; das Minimum verschwindet allmählich (Abb. (8–16)). An die Stelle der beiden Maxima tritt ein flaches Maximum, und zwar etwas unterhalb der halben Massenzahl des Targetnuklids. Außerdem entstehen im Gegensatz zur Spaltung bei niedriger Energie auch neutronenarme Nuklide, vor allen Dingen im Bereich hoher Massenzahlen; bei den leichten und schweren Spaltstücken wird etwa das gleiche

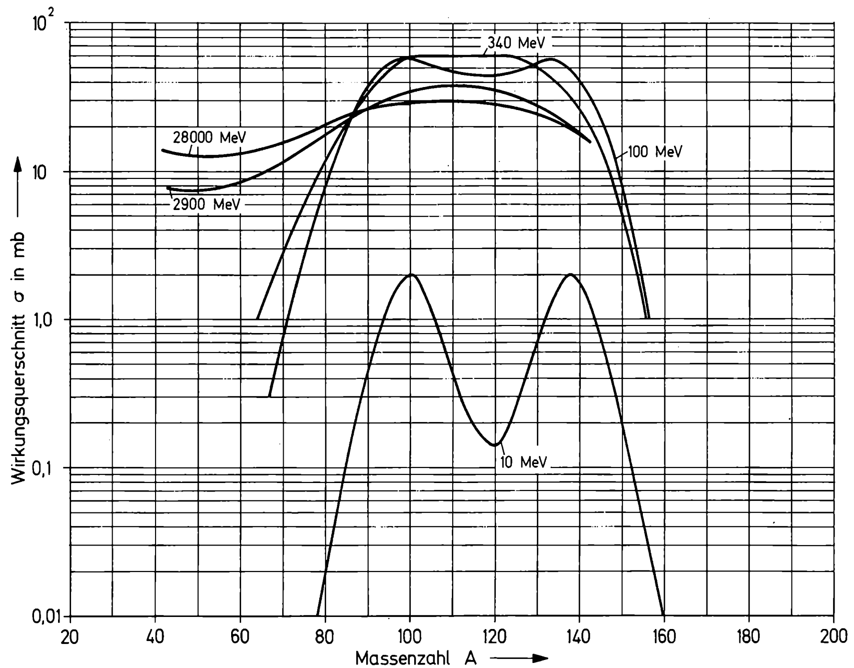


Abb. (8–16) Spaltausbeute für die Spaltung des U–238 mit Protonen verschiedener Energie. (Die Coulomb-Schwelle für die Spaltung mit Protonen liegt bei 12,3 MeV; daraus erklären sich die verhältnismäßig niedrigen Wirkungsquerschnitte für 10 MeV Protonen.) Nach P. C. STEVENSON: Physic. Rev. **111** (1958) 886; G. FRIEDLANDER: BNL 8858 (1965).

Verhältnis von Protonen und Neutronen beobachtet. Dies wird damit erklärt, daß die hohe Anregungsenergie bevorzugt durch „Verdampfen" von Neutronen abgegeben wird und daß die Spaltung so rasch erfolgt, daß eine Abstimmung des Proton-Neutron-Verhältnisses nicht möglich ist. Wenn sehr hochenergetische Protonen verwendet werden (*E* einige GeV), verschiebt sich das Bild wiederum (Abb. (8–16)); die Ausbeute an mittelschweren Nukliden geht zurück, die Ausbeute an leichten und schweren Nukliden steigt an. Die Hochenergie-Kernspaltung wird zusammen mit anderen Hochenergie-Kernreaktionen im folgenden Abschnitt noch etwas näher besprochen.

Gelegentlich findet auch eine Spaltung in drei Bruchstücke statt, die oft als „Dreifachspaltung" bezeichnet wird. In etwa 0,2 bis 0,3% aller Spaltprozesse treten neben den Neutronen andere leichte Teilchen mit großer Reichweite als drittes Bruchstück auf, am häufigsten α-Teilchen. Die Spaltung in drei Bruchstücke ungefähr gleicher Masse ist ein außerordentlich seltener Vorgang, der bei 10^6 Spaltungen höchstens einige Male stattfindet.

8.9. Hochenergie-Kernreaktionen

Tab. 8.1. läßt erkennen, daß bei höherer Energie der einfallenden Strahlung von einem Kern mehrere Teilchen emittiert werden. So treten oberhalb 10 MeV (x, 2n)-, (x, np)- und (x, 2p)-Reaktionen in den Vordergrund (x = n, p, d, α). Mit steigender Energie werden auch drei und noch mehr Teilchen ausgesandt, weil die zugeführte Energie größer ist als die Bindungsenergie mehrerer Nukleonen; die hohe Anregungsenergie wird dadurch abgegeben, daß mehrere Nukleonen — bevorzugt Neutronen — „verdampfen".

In Abb. (8–17) ist die Massendispersion bei Kernreaktionen von Protonen mit mittelschweren Nukliden für verschiedene Energien der einfallenden Strahlung aufgezeichnet. Im Energiebereich bis zu etwa 50 MeV finden Kernreaktionen statt, bei denen ein oder mehrere Teilchen emittiert werden. Die Massenzahl A ändert sich dabei nicht we-

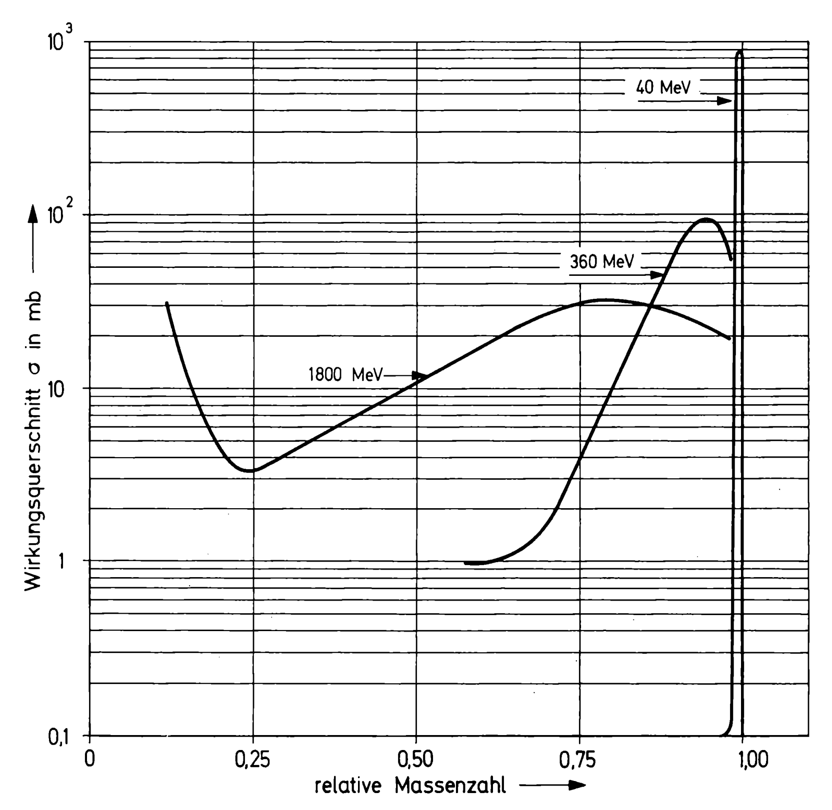


Abb. (8–17) Massendispersion bei Kernreaktionen mit mittelschweren Nukliden (Beispiel: Einwirkung von Protonen verschiedener Energie auf Kupfer). Nach J. M. Miller u. J. Hudis: Annu. Rev. nuclear Sci. **9** (1959) 159.

sentlich. Bei noch höheren Energien ($E > 100$ MeV) entstehen Produkte, die zum Teil sehr viel geringere Massenzahlen besitzen, weil sehr viele Nukleonen und außerdem Kernbruchstücke, die mehrere Nukleonen enthalten, aus dem Kern herausgeschlagen werden. Man spricht von einer Spallation oder Kernsplitterung. Wenn die Energien die Größenordnung GeV (1000 MeV) erreichen, bilden sich immer mehr leichte und mittelschwere Bruchstücke (Abb. (8–17)); der Kern „zersplittert" in größerem Umfange, die Zahl der Spallationsprodukte wird größer. An Stelle der Gl. (8.2) müssen wir zur Beschreibung dieser Hochenergie-Kernreaktionen die folgende allgemeine Formulierung wählen

$$\mathrm{A} + \mathrm{x} \longrightarrow \mathrm{B} + \mathrm{D} + \mathrm{F} + \ldots + \nu_1 \mathrm{n} + \nu_2 \mathrm{p} + \ldots + \Delta E. \quad (8.115)$$

Die Zahl der Kernbruchstücke B, D, F usw. erhöht sich mit steigender Energie, ebenso die Zahl ν_1 bzw. ν_2 der Nukleonen. Die Kurzschreibweise für Spallationsreaktionen lautet (x, s).

Bei schweren Nukliden ($Z > 70$) ist das Bild dadurch etwas verändert, daß zusätzlich Kernspaltung eintreten kann. Die Massendispersion ist in Abb. (8–18) für verschiedene Protonenenergien aufgezeichnet. Die bei etwa 40 MeV ablaufenden Kernreaktionen führen im allgemeinen nicht zu einer wesentlichen Änderung der Massenzahl. Nur die verhältnismäßig leicht spaltbaren Nuklide wie die Uranisotope U–233, U–235, U–238, die Plutoniumisotope Pu–239, Pu–242 und andere erfahren in diesem Energiebereich eine Kernspaltung, wobei Produkte niedriger Massenzahl auftreten. Bei höherer Energie (etwa 400 MeV) werden alle schweren Nuklide in merklichem Umfange gespalten. Neben den Spallationsprodukten mit Massenzahlen $A > 0{,}75\ A_0$ treten die Spaltprodukte mit Massenzahlen in der Umgebung von etwa $0{,}5\ A_0$ auf. Während die Spallationsprodukte und die Spaltprodukte bei etwa 400 MeV noch deutlich unterscheidbar sind, verwischt sich der Unterschied oberhalb von etwa 1 GeV; d. h. bei sehr hoher Energie ist in Abb. (8–18) kein grundsätzlicher Unterschied zwischen Spallation und Kernspaltung festzustellen.

Bei den Hochenergie-Kernreaktionen ist die Energie — und damit auch die Geschwindigkeit — der einfallenden Teilchen viel zu hoch, als daß eine Energieübertragung an alle Nukleonen und damit eine Anregung des gesamten Kerns stattfinden könnte. Es kommt nicht mehr zur Ausbildung eines Zwischenkerns im Sinne von Gl. (8.6). Die Hochenergie-Kernreaktionen können deshalb auch nicht mehr in zwei unabhängige Teilschritte zerlegt werden, wie dies in Gl.

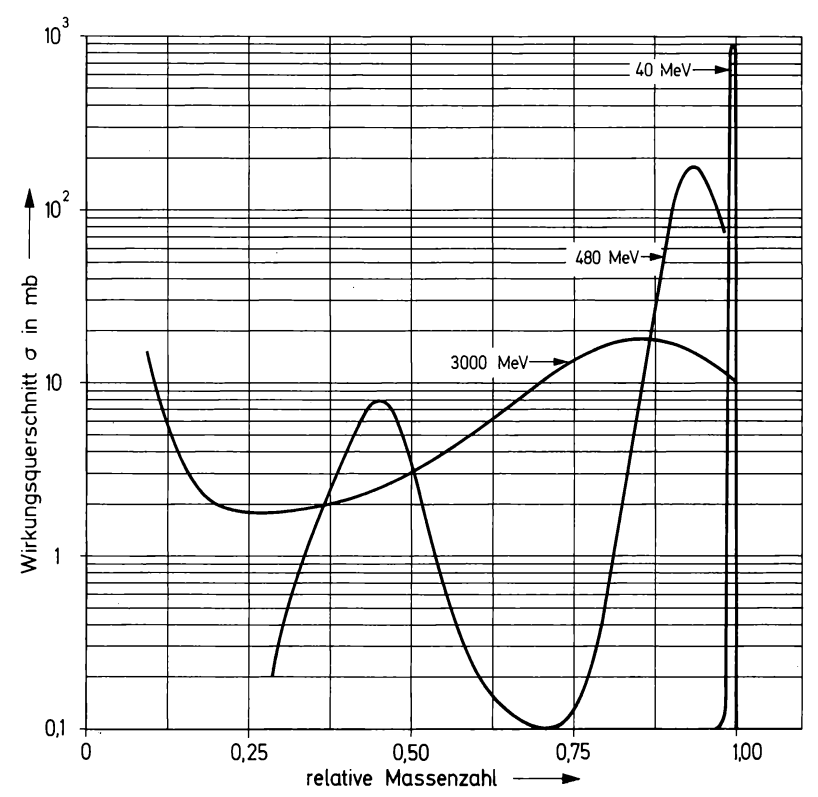


Abb. (8–18) Massendispersion bei Kernreaktionen mit schweren Nukliden (Beispiel: Einwirkung von Protonen verschiedener Energie auf Wismut). Nach J. M. MILLER u. J. HUDIS: Annu. Rev. nuclear Sci. **9** (1959) 159.

(8.6) angedeutet ist. Die mit hoher Geschwindigkeit einfallenden hochenergetischen Teilchen treffen auf ein oder mehrere Nukleonen eines Kerns auf, übertragen in aufeinanderfolgenden Zusammenstößen einen Teil ihrer kinetischen Energie auf diese Nukleonen und verlassen mit ihrer restlichen Energie wieder den Kern. Die bei diesem Prozeß durch direkte Wechselwirkung übertragenen Energiebeträge sind höher als die Bindungsenergie der getroffenen Nukleonen. Diese können deshalb entweder sofort den Kern verlassen oder ihre Energie durch weitere direkte Wechselwirkung an andere Nukleonen des Kerns übertragen; d. h., der Kern reagiert bei dieser direkten Wechselwirkung nicht mehr als eine Einheit, sondern wie eine Vielzahl von einzelnen Nukleonen. Die mittlere freie Weglänge eines Protons von etwa 100 MeV Energie in einem Kern beträgt einige F-Einheiten (1 F = $= 10^{-13}$ cm); d. h., sie ist von der gleichen Größenordnung wie der Durchmesser des Kerns. Ein hochenergetisches Teilchen kann somit

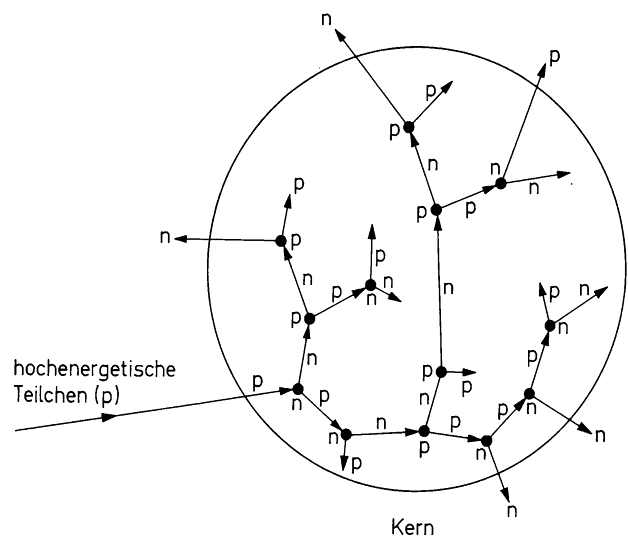


Abb. (8–19) Schema einer durch hochenergetische Teilchen in einem Kern ausgelösten Kaskade (p = Proton, n = Neutron).

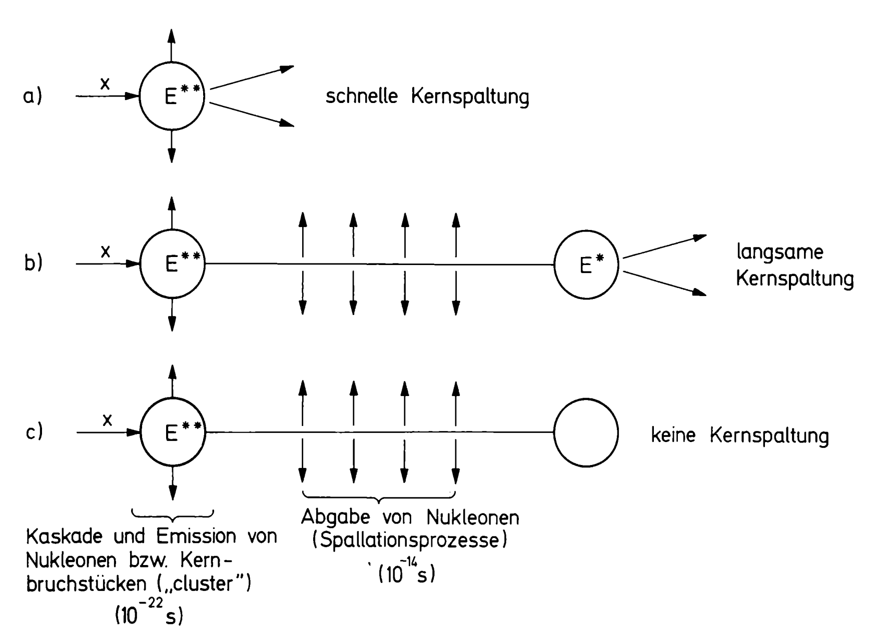


Abb. (8–20) Schema der verschiedenen Möglichkeiten nach Einfang hochenergetischer Geschoßteilchen x durch schwere Kerne (Z > 70).

a) „schnelle" Kernspaltung;
b) „langsame" Kernspaltung;
c) keine Kernspaltung.
(E^{**} = sehr hohe Anregungsenergie
E^{*} = mäßige Anregungsenergie)

durch direkte Wechselwirkung im Kern eine Kaskade von Reaktionen auslösen (Abb. (8–19)). Dabei treten auch π-Mesonen auf. Die in Abb. (8–19) angedeuteten Reaktionen einer solchen Kaskade laufen innerhalb eines sehr kurzen Zeitraumes von etwa 10^{-22} s ab. Der zurückbleibende hoch angeregte Kern kann als Spallationsprodukte Nukleonen oder Kernbruchstücke, die mehrere Nukleonen enthalten, emittieren. Dabei entsteht eine Vielzahl von Reaktionsprodukten.

Eine Kernspaltung kann entweder als „schnelle Spaltung" sofort — d. h. innerhalb von etwa 10^{-22} s — verlaufen oder (nach Abgabe des Großteils der Anregungsenergie durch Spallationsprozesse) als „langsame Spaltung", d. h. nach etwa 10^{-14} s. Dies ist schematisch in Abb. (8–20) aufgezeichnet. Während die langsame Kernspaltung ähnlich verläuft wie die Niederenergie-Kernspaltung (vgl. Abschnitt 8.8.), treten bei der schnellen Kernspaltung auch neutronenarme Produkte auf; die Massendispersion zeigt — wie bereits erwähnt — ein flaches Maximum, und die Ladungsdispersion ist erheblich breiter als bei der Niederenergie-Kernspaltung. Die schnelle Kernspaltung, bei der eine Gleichverteilung der Anregungsenergie im Kern nicht möglich ist, wird auch als „Fragmentierung" bezeichnet. Die Spaltbarkeit der Kerne (d. h. die Wahrscheinlichkeit dafür, daß eine Kernspaltung eintritt) nimmt mit Z^2/A zu (vgl. Abschnitt 7.5.); sie ist deshalb umso höher, je mehr Neutronen aus dem Kern „abgedampft" sind.

8.10. Kernverschmelzung (Fusion)

Unter Kernverschmelzung oder Fusion versteht man die Vereinigung von zwei leichteren Kernen zu einem schwereren. Wie die Kurve für die Bindungsenergie als Funktion der Massenzahl zeigt (Abb. (1–11)), können dabei erhebliche Energiebeträge in Freiheit gesetzt werden. Kernverschmelzung und Kernspaltung sind deshalb von großem praktischem Interesse. Beide Reaktionen führen von verschiedenen Seiten in Richtung auf das Gebiet mittelschwerer Kerne, die sich durch die höchste Bindungsenergie auszeichnen.

Die allgemeine Formulierung von Fusionsreaktionen lautet:

$$\mathrm{A} + \mathrm{B} \longrightarrow \mathrm{D} + \Delta E. \tag{8.116}$$

Beispiele von Kernverschmelzungsreaktionen haben wir bereits in Abschnitt 8.5. kennengelernt, zum Beispiel Gl. (8.49); dabei entsteht aus

einem Deuteron und einem Triton ein Heliumkern. Helium zeichnet sich durch eine besonders hohe Bindungsenergie der Nukleonen aus (vgl. Abb. (1–10)). Deshalb besitzt die Umsetzung von Wasserstoff zu Helium besondere Bedeutung. Diese Fusionsreaktion kann folgendermaßen formuliert werden:

$$4\,p \longrightarrow {}^{4}He + 2\,e^{+} + 2\,\nu + \Delta E. \tag{8.117}$$

Für die freiwerdende Energie berechnet man

$$\Delta E = (4\,m_p - m_{He} - 2\,m_e)\,c^2 \tag{8.118}$$

bzw.

$$\Delta E = (4\,M_H - M_{He} - 4\,m_e)\,c^2 \tag{8.119}$$

(m ist die Kernmasse und M die Nuklidmasse). Durch Einsetzen der Zahlenwerte folgt:

$$\Delta E = 931{,}48\,(4 \cdot 1{,}0078252 - 4{,}0026031 - 4 \cdot 0{,}0005486)\,\text{MeV}$$
$$\Delta E = 24{,}69\,\text{MeV}.$$

Zu diesem Energiebetrag kommt noch die aus der Reaktion $e^{+} + e^{-} \rightarrow \rightarrow 2\,h\nu$ (Vernichtungsstrahlung) herrührende Energie ($2 \cdot 1{,}02$ MeV), während andererseits die Energie, die von den Neutrinos mitgenommen wird (etwa 2% von ΔE), infolge der geringen Wechselwirkung der Neutrinos dem System verlorengeht. Die insgesamt freiwerdende Energie beträgt somit 26,2 MeV. Bezogen auf die Mengeneinheit der umgesetzten Nuklide ist dies ein sehr hoher Energiebetrag ($\approx$ 6,5 MeV pro ame). Er ist erheblich höher als die bei der Kernspaltung pro Masseneinheit freiwerdende Energie ($\approx$ 0,8 MeV pro ame). Man hat berechnet, daß die Energie, die in der Sonne und in Fixsternen produziert wird, nicht durch die Spaltung schwerer Nuklide aufgebracht werden kann, weil der Gehalt an schweren Nukliden viel zu gering ist. Für die Energieproduktion müssen deshalb Fusionsreaktionen verantwortlich sein, vorzugsweise die Verschmelzung von Protonen zu Helium nach Gl. (8.117). Für diese Hypothese spricht auch die Häufigkeit dieser beiden Elemente in der Sonne.

Im Hinblick auf die Bildung von Helium aus Wasserstoff in der Sonne und den Sternen werden zwei Reaktionszyklen diskutiert:

a) Deuterium-Zyklus (Salpeter 1952)

$$p + p \longrightarrow d + e^{+} + \nu \quad \text{(langsam)} \tag{8.120}$$

$$d + p \longrightarrow {}^{3}\mathrm{He} + \gamma \quad \text{(rasch)} \tag{8.121}$$

$${}^{3}\mathrm{He} + {}^{3}\mathrm{He} \longrightarrow {}^{4}\mathrm{He} + 2p \quad \text{(rasch)}; \tag{8.122}$$

b) Kohlenstoff-Stickstoff-Zyklus (Bethe 1938)

$$\begin{aligned} {}^{12}\mathrm{C} + p &\longrightarrow {}^{13}\mathrm{N} + \gamma \\ &\qquad \llcorner\!\longrightarrow {}^{13}\mathrm{C} + e^{+} + \nu \end{aligned} \tag{8.123}$$

$${}^{13}\mathrm{C} + p \longrightarrow {}^{14}\mathrm{N} + \gamma \tag{8.124}$$

$$\begin{aligned} {}^{14}\mathrm{N} + p &\longrightarrow {}^{15}\mathrm{O} + \gamma \\ &\qquad \llcorner\!\longrightarrow {}^{15}\mathrm{N} + e^{+} + \nu \end{aligned} \tag{8.125}$$

$${}^{15}\mathrm{N} + p \longrightarrow {}^{12}\mathrm{C} + {}^{4}\mathrm{He}. \tag{8.126}$$

Die Bruttoreaktion ist bei beiden Zyklen gegeben durch Gl. (8.117).

Voraussetzung für den Ablauf dieser Reaktionen ist, daß die Reaktionspartner genügend hohe kinetische Energie besitzen, um die Coulombsche Abstoßung überwinden zu können. Diese beträgt nach Abschnitt 8.3., Gl. (8.27), für die Reaktion zwischen zwei Protonen (Zyklus a) $\approx 0{,}5$ MeV und für die Reaktion zwischen einem ^{12}C-Kern und einem Proton (Zyklus b) $\approx 1{,}8$ MeV. Nach der kinetischen Gastheorie besteht zwischen der mittleren kinetischen Energie $\bar{E}_{\mathrm{kin}}$ von Gasmolekülen und ihrer Temperatur die Beziehung:

$$\bar{E}_{\mathrm{kin}} = \frac{m}{2}\overline{v^2} = \frac{3}{2}\,k_{\mathrm{B}}T\,(T \text{ in } {}^{\circ}\mathrm{K}). \tag{8.127}$$

Die wahrscheinlichste Geschwindigkeit v, die dem Maximum der Maxwellschen Geschwindigkeitsverteilung entspricht, beträgt

$$v = \sqrt{\frac{2}{3}\overline{v^2}}\,. \tag{8.128}$$

Damit erhält man für die wahrscheinlichste kinetische Energie:

$$E_{\text{kin}} = \frac{m}{2}v^2 = k_B T. \tag{8.129}$$

Legt man diese Beziehung einer Temperaturberechnung zu Grunde, so folgt, daß eine Energie von 1 eV einer Temperatur von $1{,}16 \cdot 10^4$ °K entspricht.

Die Temperatur auf der Sonnenoberfläche beträgt 6000 °K, im Sonneninnern etwa $1{,}5 \cdot 10^7$ °K; die letztgenannte Temperatur entspricht einer kinetischen Energie von 1,3 keV. Wie bereits erwähnt, sind etwa 500 keV erforderlich, damit der Deuterium-Zyklus ablaufen kann; d. h. es muß ein Proton hoher Energie (etwa 500 keV) mit einem Proton mittlerer Energie (1,3 keV) zusammentreffen, oder zwei Protonen hoher Energie (je etwa 250 keV) müssen aufeinanderstoßen, damit der erste Teilschritt des Deuterium-Zyklus möglich ist. Der Kohlenstoff-Stickstoff-Zyklus erfordert etwa viermal so hohe Energien bzw. Temperaturen. Obwohl die mittlere kinetische Energie der Atome erheblich niedriger ist als die für den Deuterium-Zyklus erforderliche Energie, können diese Fusionsreaktionen doch in geringem Umfang ablaufen; denn infolge der Maxwellschen Energieverteilung besitzt ein sehr kleiner Prozentsatz der Atome auch Energien, die erheblich höher sind als die mittlere oder die wahrscheinlichste Energie.

Da die Fusionsreaktionen in einem abgeschlossenen System nur dann stattfinden können, wenn dieses System sehr hohe Temperaturen besitzt, spricht man von thermonuklearen Reaktionen. Es wird angenommen, daß thermonukleare Reaktionen nach dem Deuterium-Zyklus bevorzugt in der Sonne und in kälteren Sternen ablaufen, während in heißeren Sternen der Kohlenstoff-Stickstoff-Zyklus überwiegt.

Im Innern der Sterne rechnet man mit Dichten von der Größenordnung 10^5g/cm^3 und mit Temperaturen von der Größenordnung 10^8 bis 10^9 °K. Unter diesen extremen Bedingungen sind noch andere thermonukleare Reaktionen denkbar, z. B. Fusionsreaktionen mit Helium. Im Gleichgewicht wird aus Helium eine kleine Menge an Beryllium gebildet:

$$^4\text{He} + {}^4\text{He} \rightleftharpoons {}^8\text{Be}. \tag{8.130}$$

Die niedrige Konzentration von Be–8 reicht aus, damit Fusionsreak-

tionen mit Helium stattfinden können, die zum Aufbau höherer Elemente führen:

$$^{8}\mathrm{Be} + {}^{4}\mathrm{He} \longrightarrow {}^{12}\mathrm{C} + \gamma, \qquad (8.131)$$

$$^{12}\mathrm{C} + {}^{4}\mathrm{He} \longrightarrow {}^{16}\mathrm{O} + \gamma. \qquad (8.132)$$

Bei Temperaturen von etwa 10^9 °K können auch Fusionsreaktionen zwischen C–12 oder O–16 eintreten, z. B.

$$^{12}\mathrm{C} + {}^{12}\mathrm{C} \longrightarrow {}^{24}\mathrm{Mg} + \gamma \qquad (8.133)$$

$$^{12}\mathrm{C} + {}^{12}\mathrm{C} \longrightarrow {}^{23}\mathrm{Na} + \mathrm{p} \qquad (8.134)$$

$$^{12}\mathrm{C} + {}^{12}\mathrm{C} \longrightarrow {}^{20}\mathrm{Ne} + {}^{4}\mathrm{He} \qquad (8.135)$$

$$^{12}\mathrm{C} + {}^{16}\mathrm{O} \longrightarrow {}^{28}\mathrm{Si} + \gamma \qquad (8.136)$$

$$^{12}\mathrm{C} + {}^{16}\mathrm{O} \longrightarrow {}^{24}\mathrm{Mg} + {}^{4}\mathrm{He} \qquad (8.137)$$

$$^{16}\mathrm{O} + {}^{16}\mathrm{O} \longrightarrow {}^{32}\mathrm{S} + \gamma \qquad (8.138)$$

$$^{16}\mathrm{O} + {}^{16}\mathrm{O} \longrightarrow {}^{28}\mathrm{Si} + {}^{4}\mathrm{He} \qquad (8.139)$$

Die hochenergetischen α-Teilchen, die zum Teil bei diesen Kernreaktionen entstehen, sind befähigt (α, γ)-Reaktionen auszulösen, z. B.

$$^{32}\mathrm{S} + {}^{4}\mathrm{He} \longrightarrow {}^{36}\mathrm{Ar} + \gamma. \qquad (8.140)$$

Man stellt sich vor, daß auf diese Weise durch exoergische thermonukleare Reaktionen allmählich Elemente höherer Ordnungszahl aufgebaut wurden. Die schweren Elemente werden wahrscheinlich durch Neutroneneinfang und β^--Zerfall gebildet.

Die Durchführung kontrollierter thermonuklearer Reaktionen im Laboratorium stößt auf erhebliche Schwierigkeiten, insbesondere deshalb, weil ein abgeschlossenes System auf hohe Temperatur aufgeheizt werden muß. Es sind verschiedene Anordnungen aufgebaut worden (z. B. „Zeta“ in England, „Stellatron“ und „Perhapsatron“ in den USA). Die Energie wird durch ein starkes elektromagnetisches Feld

zugeführt; auch die Begrenzung des Systems ist durch das elektromagnetische Feld gegeben. Bei den hohen Temperaturen sind die Elemente niedriger Ordnungszahl vollständig ionisiert. Ein solches System, das aus Ionen und Elektronen besteht, nennt man ein Plasma. Die Handhabung, Begrenzung und Aufheizung eines Plasmas sind wichtige technische Voraussetzungen für die Durchführung kontrollierter thermonuklearer Reaktionen.

Fusionsreaktionen zwischen Deuteronen (D-D-Reaktionen) bzw. zwischen Deuteronen und Tritonen (D-T-Reaktionen) haben erheblich höhere Wirkungsquerschnitte als Fusionsreaktionen zwischen Protonen (P-P-Reaktionen). Sie besitzen aus diesem Grunde besondere Bedeutung:

$$d + d \longrightarrow t + p + 4{,}0\,\text{MeV} \tag{8.141}$$

$$d + t \longrightarrow {}^4\text{He} + n + 17{,}6\,\text{MeV} \tag{8.142}$$

bzw.

$$d + d \longrightarrow {}^3\text{He} + n + 3{,}3\,\text{MeV} \tag{8.143}$$

$$d + {}^3\text{He} \longrightarrow {}^4\text{He} + p + 18{,}3\,\text{MeV} \tag{8.144}$$

Die Bruttoreaktion besteht in jedem Falle darin, daß aus drei Deuteronen ein He–4, ein Proton und ein Neutron gebildet werden. Die dabei freiwerdende Energie beträgt 21,6 MeV oder etwa 3,5 MeV pro ame. Da Deuterium im Wasser in nahezu unerschöpflichen Mengen zur Verfügung steht, sind diese Reaktionen von großem praktischem Interesse für die Energieversorgung in der Zukunft. Die Wirkungsquerschnitte für die D-D- und die D-T-Reaktion sind in Abb. (8–21) als Funktion der Energie der Deuteronen aufgezeichnet. Aus dieser Abbildung kann man entnehmen, daß ein Plasma aus Deuteronen auf etwa 10^8 °K (entsprechend etwa 10 keV) aufgeheizt werden muß, damit die thermonuklearen D-D- bzw. D-T-Reaktionen in Gang kommen und soviel Energie produzieren, daß die Temperatur aufrechterhalten und die in einem solchen thermonuklearen Reaktor freiwerdende Energie nach außen abgeführt werden kann. Diese Aufgabe bringt große technische Probleme, die bisher noch nicht gelöst werden konnten.

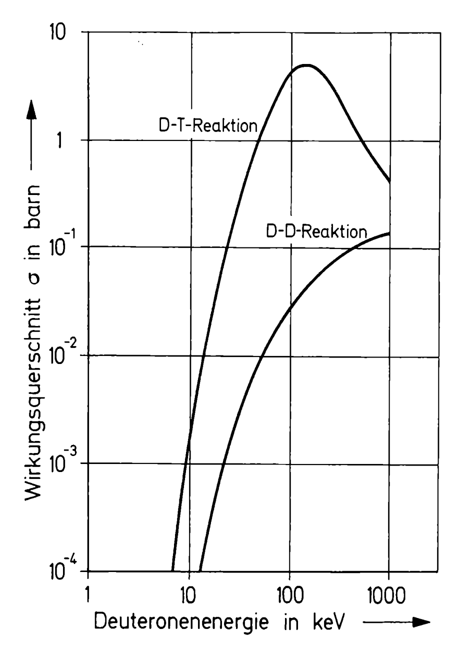


Abb. (8–21) Wirkungsquerschnitte der D–D- und D–T-Reaktionen als Funktion der Energie der Deuteronen. Nach A. S. Bishop: Project Sherwood — The U.S. Program in Controlled Fusion. Addison-Wesley Publ. Comp., Reading, Mass., 1958.

Unkontrollierte Fusionsreaktionen wurden bei der Explosion der Wasserstoffbombe realisiert. Dabei spielt die D-T-Reaktion (8.142), eventuell auch die D-D-Reaktion (8.143) und die T-T-Reaktion, eine Rolle:

$$t + t \longrightarrow {}^4\mathrm{He} + 2\,\mathrm{n} + 11{,}3\,\mathrm{MeV}. \qquad (8.145)$$

Tritium kann durch eine (n, α)-Reaktion aus ^{6}LiD in der Wasserstoffbombe erzeugt werden, vgl. Gl. (8.50).

Zum Vergleich werden einige wichtige Gesichtspunkte der Kernspaltung und der Fusion einander gegenübergestellt.

Kernspaltung: Die Energiegewinnung durch Spaltung von 1 kg Kernbrennstoff entspricht der Verbrennung von $2 \cdot 10^6$ kg Kohle. Dabei entstehen große Mengen hochradioaktiver Spaltprodukte.

Fusion: Die Energiegewinnung durch Fusion von 1 kg Deuterium entspricht der Verbrennung von $8 \cdot 10^6$ kg Kohle. Bezogen auf Wasser folgt daraus: Die Fusion des in 1 Liter Wasser enthaltenen Deuteriums entspricht der

Verbrennung von 120 kg Kohle. Bei der Fusion entstehen keine hochradioaktiven Produkte.

8.11. Theoretische Behandlung von Kernreaktionen

Zwei Modelle für den Ablauf von Kernreaktionen haben wir bereits in den vorausgehenden Abschnitten erwähnt: Das Modell des Zwischenkerns (Abschnitt 8.1.) und das Modell der direkten Wechselwirkung (Abschnitt 8.9.). Das Modell des Zwischenkerns geht auf BOHR (1936) zurück. Eine Kernreaktion wird dabei in zwei Teilschritte zerlegt (vgl. Abschn. 8.1., Gl. (8.6)):

$$\mathrm{A} + \mathrm{x} \longrightarrow (\mathrm{C}) \longrightarrow \mathrm{B} + \mathrm{y}. \tag{8.146}$$

Im ersten Teilschritt wird das Teilchen x von dem Nuklid A eingefangen; dabei entsteht der angeregte Zwischenkern C. Die Anregungsenergie beträgt

$$E' = E_\mathrm{B} + E_\mathrm{x} - E_\mathrm{C} = E_\mathrm{B} + E_\mathrm{x}\left(\frac{M_\mathrm{A}}{M_\mathrm{x} + M_\mathrm{A}}\right); \tag{8.147}$$

E_B ist die Bindungsenergie des Teilchens x im Kern, E_x seine kinetische Energie und E_C die kinetische Energie des Zwischenkerns. Im zweiten Teilschritt zerfällt der Zwischenkern im Sinne der Gl. (8.146). Aus der Breite der Resonanzlinien in den Kurven für die Wirkungsquerschnitte ($\Delta E \approx 0{,}1$ eV) berechnet man mit Hilfe der Heisenbergschen Ungenauigkeitsrelation

$$\Delta t \cdot \Delta E \approx \frac{h}{2\pi}, \tag{8.148}$$

daß die Lebensdauer des Zwischenkerns etwa 10^{-15} bis 10^{-14} s beträgt. Diese Zeit ist lang im Vergleich zu der Zeit, die beispielsweise ein Neutron zum Durchqueren des Kerns benötigt (etwa 10^{-21} s bei einer Energie von 1 MeV und etwa 10^{-17} s bei einer Energie von 0,01 eV). Während dieser verhältnismäßig langen Lebensdauer des Zwischenkerns wird die Anregungsenergie gleichmäßig auf alle Nukleonen des Kerns übertragen. Der Zwischenkern „weiß nicht mehr", auf welche Weise er entstanden ist; d. h. sein Zerfall ist unabhängig von der Art seiner Entstehung, er ist nur abhängig von der Anregungs-

energie. Die Anregungsenergie „fluktuiert“ im Kern. Wenn sie hoch genug ist (etwa 8 MeV), kann ein Nukleon emittiert werden, sonst wird ein γ-Quant ausgesandt.

Wenn die Anregungsenergie E' nach Gl. (8.147) einem angeregten Zustand des Zwischenkerns entspricht, liegt Resonanz vor; der Wirkungsquerschnitt als Funktion der Energie (Anregungsfunktion) zeigt ein Maximum (Resonanzabsorption, vgl. Abb. (8–7)). Jeder angeregte Zustand des Zwischenkerns hat eine bestimmte mittlere Lebensdauer $\tau = 1/\lambda$; λ ist die Zerfallskonstante des betreffenden angeregten Zustandes des Zwischenkerns. Zur Charakterisierung der angeregten Zustände bei Kernreaktionen benutzt man die Linienbreite Γ, die direkt als Halbwertsbreite der Resonanzlinien aus den Anregungsfunktionen abgelesen werden kann und in Anlehnung an Gl. (8.148) durch folgende Gleichung definiert ist:

$$\Gamma \approx \frac{h}{2\pi\tau}. \tag{8.149}$$

Die Linienbreite Γ ist die Unschärfe hinsichtlich der Energie und τ die Unschärfe hinsichtlich der Zeit. Lange Lebensdauer τ entspricht einer scharf definierten Energie, d. h. einer kleinen Linienbreite Γ und umgekehrt.

Ein bestimmter Zwischenkern C kann auf verschiedene Weise entstehen und in verschiedener Weise zerfallen (vgl. Abschn. 8.5.):

$$\begin{array}{lcl} \mathrm{A_1 + x_1} \searrow & & \nearrow \mathrm{B_1 + y_1} \\ \mathrm{A_2 + x_2} \longrightarrow & \mathrm{(C)} & \longrightarrow \mathrm{B_2 + y_2} \\ \mathrm{A_3 + x_3} \nearrow & & \searrow \mathrm{B_3 + y_3} \\ \text{usw.} & & \text{usw.} \end{array} \tag{8.150}$$

Jeder Zerfallsmöglichkeit entspricht eine partielle Linienbreite Γ_i, so daß die gesamte Linienbreite Γ gegeben ist durch

$$\Gamma = \Gamma_{y_1} + \Gamma_{y_2} + \Gamma_{y_3} + \dots \tag{8.151}$$

Wenn der Zerfall des Zwischenkerns unabhängig ist von der Art seiner Entstehung, so müssen bei gleicher Anregungsenergie E' des Kerns folgende Beziehungen gelten:

$$\frac{\sigma(x_1, y_1)}{\sigma(x_1, y_2)} = \frac{\Gamma_{y_1}}{\Gamma_{y_2}} \quad \frac{\sigma(x_2, y_1)}{\sigma(x_2, y_2)}. \tag{8.152}$$

Dies wurde von GHOSHAL (1950) erstmals überprüft.

Das Modell des Zwischenkerns erlaubt auch die Berechnung der Wirkungsquerschnitte für Kernreaktionen. Der Wirkungsquerschnitt $\sigma(x, y)$ für eine Kernreaktion A (x, y) B ist gegeben durch das Produkt aus der Wahrscheinlichkeit für die Bildung des Zwischenkerns durch Einfang des Teilchens x und der Wahrscheinlichkeit für den Zerfall unter Aussendung des Teilchens y (vgl. Abschn. 8.1.)

$$\sigma_{(x,y)} = \sigma_{(x)} \frac{\Gamma_y}{\Gamma}. \tag{8.153}$$

Zur Berechnung von Wirkungsquerschnitten entwickelten BREIT und WIGNER (1936) die folgende Gleichung:

$$\sigma_{(x,y)} = \frac{\lambda^2}{4\pi} \frac{2I_C + 1}{(2I_A + 1)(2I_x + 1)} \frac{\Gamma_x \Gamma_y}{(E - E_0)^2 + (\Gamma/2)^2}; \tag{8.154}$$

λ ist die de Broglie-Wellenlänge des einfallenden Teilchens:

$$\lambda = \frac{h}{m \cdot v} = \frac{h}{\sqrt{2mE}}. \tag{8.155}$$

I_C, I_A und I_x sind die Kernspins der Reaktionspartner. E ist die Energie der Teilchen x, E_0 die Resonanzenergie. Die Wahrscheinlichkeit für die Bildung des Zwischenkerns ist nach der Wellenmechanik proportional λ^2. $[(E-E_0)^2 + (\Gamma/2)^2]^{-1}$ ist der „Resonanzfaktor"; er hat den größten Wert für $E = E_0$ (Resonanzlinie). Γ_y und Γ_x sind die partiellen Linienbreiten für den Zerfall unter Emission der Teilchen x bzw. y. Wenn ein Teilchen mit dem Kernspin 0 eingefangen wird, hat der Faktor, der die Kernspins enthält, den Wert 1. Diese für eine Resonanzlinie gültige Form der Breit-Wignerschen Formel (8.154) genügt für viele praktische Fälle. Die vollständige Beziehung enthält zusätzliche Faktoren, welche den Einfluß mehrerer benachbarter Resonanzen berücksichtigen.

Für die (n, γ)-Reaktionen mit thermischen Neutronen gibt Gl. (8.154) die Energieabhängigkeit des Wirkungsquerschnitts richtig wieder. Im Energiebereich thermischer Neutronen sind keine Reso-

nanzlinien vorhanden. Die Energie E ist sehr viel kleiner als die Energie der ersten Resonanzlinie $E \ll E_0$. $\Gamma_y = \Gamma_\gamma$ ist praktisch konstant, weil die Wahrscheinlichkeit für die Emission eines γ-Quants mit einer Energie von der Größenordnung 1 MeV sich nicht ändert, wenn die Neutronenenergie um einige eV verschieden ist. $\Gamma_x = \Gamma_n$ ist proportional der Geschwindigkeit v der Neutronen. Mit Gl. (8.155) folgt:

$$\sigma_{(n,\gamma)} \sim \frac{1}{v}. \qquad (8.156)$$

Im Bereich mittlerer Energie (etwa 1 MeV) kann man über mehrere Resonanzen mitteln und erhält dann aus der Breit-Wigner-Formel für den mittleren Wirkungsquerschnitt von (n, γ)-Reaktionen:

$$\bar{\sigma}_{(n,\gamma)} = \frac{\lambda^2}{2} \frac{\Gamma_\gamma}{D}, \qquad (8.157)$$

wenn D der Abstand der Resonanzlinien ist. Bei den Nukliden mit den Neutronenzahlen 50, 82 oder 126 (magische Zahlen) ist der Abstand der Resonanzen besonders groß und demzufolge der mittlere Wirkungsquerschnitt für (n,γ)-Reaktionen in diesem Energiebereich besonders niedrig.

Für (p, n)- und (α, n)-Reaktionen sagt die Theorie voraus, daß sie bevorzugt vor anderen Reaktionen ablaufen, wenn die Energie der einfallenden Strahlen genügend hoch ist (> 1 MeV), weil dann von dem angeregten Zwischenkern vorwiegend Neutronen emittiert werden. Der Wirkungsquerschnitt dieser Reaktionen ist dann gegeben durch den Einfangsquerschnitt für die Protonen bzw. α-Teilchen:

$$\sigma_{(p,n)} \approx \sigma_{(p)}; \quad \sigma_{(\alpha,n)} \approx \sigma_{(\alpha)}. \qquad (8.158)$$

Das Modell des Zwischenkerns kann bei Hochenergie-Kernreaktionen nicht mehr angewendet werden (vgl. Abschn. 8.9.). Beispielsweise beobachtet man bei hoher Energie der einfallenden Strahlung, daß die emittierten Teilchen mit verhältnismäßig hoher Energie ausgesandt werden, und zwar bevorzugt in Richtung der einfallenden Strahlung. Beide Beobachtungen stehen im Widerspruch zur Bildung eines Zwischenkerns, in dem sich die Energie gleichmäßig auf alle Nukleonen verteilt. Man muß deshalb eine direkte Wechselwirkung zwischen den einfallenden Teilchen und den einzelnen Nukleonen des Kerns annehmen, die wegen der hohen Geschwindigkeit so rasch er-

folgt, daß es nicht zur Ausbildung eines gleichmäßig angeregten Zwischenkerns kommt. Die bei dieser direkten Wechselwirkung auftretenden Kaskaden von Einzelreaktionen mit den Nukleonen eines Kerns haben wir bereits in Abschnitt 8.9. besprochen. Ein anschauliches Bild ist die Wirkung einer Kegelkugel, die mit sehr hoher Energie auftrifft; dabei werden bevorzugt einzelne Kegel herausgeschleudert, während bei einem Wurf mit niedrigerer Energie eine größere Chance besteht, alle Kegel zu erfassen.

Im Bereich mäßig hoher Energien erscheint es sinnvoll, das Modell der direkten Wechselwirkung mit dem Modell des Zwischenkerns zu kombinieren, indem man von der Vorstellung ausgeht, daß das einfallende Teilchen zunächst mit den Nukleonen an der Oberfläche des Kerns in direkte Wechselwirkung treten kann, seine Energie aber an eine Vielzahl von Nukleonen überträgt, wenn es ins Innere des Kerns gelangt ist.

Auch für die Abstreifreaktionen (vgl. Abschn. 8.5.) und einige Kernphotoreaktionen versagt das Modell des Zwischenkerns. Die Reaktionen mit Deuteronen können nicht nur nach dem folgenden Schema ablaufen:

$$A + d \longrightarrow (C) \begin{array}{l} \nearrow B_1 + p \\ \searrow B_2 + n \end{array} \tag{8.159}$$

sondern wegen der geringen Bindungsenergie zwischen Neutron und Proton im Deuteron auch nach den Gleichungen

$$\begin{array}{l} A + d \longrightarrow (C') + p \\ \qquad\qquad\;\; \llcorner\!\!\longrightarrow B_1 + \gamma \end{array} \tag{8.160}$$

oder

$$\begin{array}{l} A + d \longrightarrow (C'') + n \\ \qquad\qquad\;\; \llcorner\!\!\longrightarrow B_2 + \gamma \end{array} \tag{8.161}$$

Bei den Abstreifreaktionen (8.160) und (8.161) wird dasjenige Nukleon eingefangen (Neutron oder Proton), das zuerst in den Bereich der Kernkräfte gelangt. Die schwache Bindung zwischen Proton und Neu-

tron wird gelöst. Das andere Teilchen fliegt weiter und ist an der Bildung des Zwischenkerns nicht beteiligt. Wegen der vielfältigen Reaktionsmöglichkeiten mit Deuteronen, die in den Gln. (8.159) bis (8.161) zum Ausdruck kommen, ist der Wirkungsquerschnitt dieser Reaktionen größer als für Protonen gleicher Energie. Außerdem kann die Reaktion (8.160) auch bei verhältnismäßig niedriger Energie stattfinden, weil die Coulomb-Schwelle nicht überwunden werden muß. Aus diesen Gründen sind Reaktionen mit Deuteronen von großem praktischem Interesse, sowohl für die Gewinnung von Radionukliden als auch für die Untersuchung von Kernreaktionen.

Bei Reaktionen mit γ-Quanten erwartet man nach dem Modell des Zwischenkerns bevorzugt die Aussendung von Neutronen, weil diese auch dann den Kern verlassen können, wenn sie niedrige Energie besitzen. Der Wirkungsquerschnitt für (γ, p)-Reaktionen ist aber sehr viel höher, als diesem Modell entspricht. Man muß deshalb annehmen, daß es auch bei der Einwirkung von γ-Quanten nicht zur Bildung eines Zwischenkerns kommt, in dem die Anregungsenergie gleichmäßig auf alle Nukleonen verteilt ist, sondern daß das γ-Quant mit einem Nukleon in direkte Wechselwirkung tritt, so daß die gesamte Energie auf das betreffende Nukleon (Proton oder Neutron) übertragen wird.

Für die quantitative Beschreibung von Streu- und Absorptionsprozessen hat das sogenannte optische Modell Bedeutung gewonnen. Die Bezeichnung beruht auf der Analogie zum Verhalten eines Lichtstrahls in einer trüben Glaskugel. Der Lichtstrahl entspricht der einfallenden Strahlung, die trübe Glaskugel dem Kern. Das Licht kann in der Glaskugel reflektiert werden und wieder austreten (Streuung). Es kann aber auch absorbiert werden (Bildung des Zwischenkerns). Der Zerfall des Zwischenkerns wird bei dem optischen Modell nicht behandelt. Das Modell ist deshalb wichtig für die Berechnung der Wirkungsquerschnitte für die Absorption und Streuung, insbesondere auch der Winkelabhängigkeit der Streuung. Der Kern wird ersetzt durch ein Potential mit der Tiefe $V_0 + \mathrm{i}\, W_0$ und dem Radius R (Abb. (8–22)). Der Imaginärteil $\mathrm{i}\, W_0$ ist eingeführt, um den Absorptionseigenschaften des Kerns — d. h. der Bildung eines Zwischenkerns — Rechnung zu tragen. Das einfallende Teilchen wird durch eine Wellenfunktion dargestellt. Das Verhalten im Kern wird beschrieben durch die Lösungen der Wellenfunktion innerhalb des Potentials. Das Teilchen wird mehrmals im Kern reflektiert, bevor es wieder austritt oder absorbiert wird; d. h. nach dem optischen Modell bildet sich der Zwischenkern erst nach einer gewissen Verzögerungszeit und nur mit einer gewissen

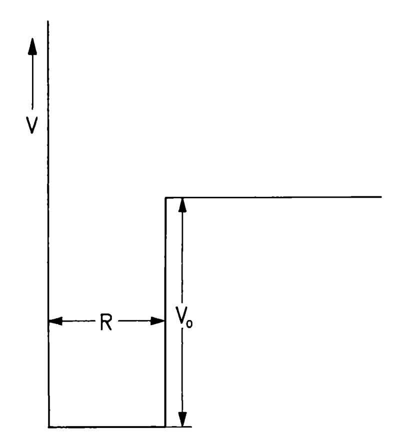


Abb. (8–22) Potentialverlauf beim optischen Modell.

Wahrscheinlichkeit. Aus den Absorptionseigenschaften ergibt sich die mittlere freie Weglänge Λ für das einfallende Teilchen

$$\Lambda = \frac{h}{4\pi\sqrt{\mu}} \frac{1}{\sqrt{[(E+V_0)^2 + W_0^2]^{\frac{1}{2}} - (E+V_0)}}. \quad (8.162)$$

μ ist die reduzierte Masse, E die kinetische Energie des Systems. Die mittlere freie Weglänge ist bestimmt durch den mittleren Wirkungsquerschnitt $\bar{\sigma}$ für die Wechselwirkung des einfallenden Teilchens mit den Nukleonen des Kerns und die Zahl N der Nukleonen pro cm^3; daraus folgt

$$\bar{\sigma} = \frac{1}{\Lambda N}. \quad (8.163)$$

Literatur zu Kapitel 8

1. I. Kaplan: Nuclear Physics, 2. Aufl., Addison-Wesley Publ. Comp., Reading 1964.
2. R. D. Evans: The Atomic Nucleus. McGraw-Hill Book Comp., New York 1955.
3. G. Friedlander, J. W. Kennedy, J. M. Miller: Nuclear and Radiochemistry, 2. Aufl., John Wiley and Sons, New York 1964.
4. J. Blatt, V. Weisskopf: Theoretical Nuclear Physics. John Wiley and Sons, New York 1952.
5. N. Bohr: Neutron Capture and Nuclear Constitution. Nature (London) **137** (1936) 344.
6. N. Bohr, J. A. Wheeler: The Mechanism of Nuclear Fission. Physic. Rev. **56** (1939) 2426.

7. E. K. HYDE: The Nuclear Properties of the Heavy Elements. Bd. III: Fission Phenomena. Prentice-Hall, Englewood Cliffs, New Jersey, 1964.
8. F. L. FRIEDMAN, V. F. WEISSKOPF: The Compound Nucleus. In: Niels Bohr and the Development of Physics. Hrsg. W. PAULI. McGraw-Hill Book Comp., New York 1955, S. 134.
9. B. B. KINSEY: Nuclear Reaction, Levels and Spectra of Heavy Nuclei. Handbuch der Physik. Hrsg. S. FLÜGGE. Bd. 40: Kernreaktionen I. Springer-Verlag, Berlin-Göttingen-Heidelberg 1957, S. 202; J. RAINWATER: Resonance Processes by Neutrons, ibid., S. 373.
10. D. H. WILKINSON: Nuclear Photodisintegration. Annu. Rev. nuclear Sci. **9** (1959) 1.
11. G. HERRMANN: 25 Jahre Kernspaltung, Radiochim. Acta **3** (1964) 169 u. **4** (1965) 173.
12. J. M. MILLER, J. HUDIS: High-Energy Nuclear Reactions. Annu. Rev. nuclear Sci. **9** (1959) 159.
13. I. HALPERN: Nuclear Fission. Annu. Rev. nuclear Sci. **9** (1959) 245.
14. S. KATCOFF: Fission-Product Yields from Neutron Induced Fission. Nucleonics **18**, Nr. 11 (März 1960) 201.
15. A. C. WAHL, R. L. FERGUSON, D. R. NETHEWAY, D. E. TROUTNER, K. WOLFSBERG: Nuclear Charge Distribution in Low-Energy Fission. Physic. Rev. **126** (1962) 1112.
16. R. HUBY: Stripping Reactions. In: Progress in Nuclear Physics, Bd. III. Hrsg. O. FRISCH. Pergamon Press, London 1953, S. 177.
17. P. MORRISON: A Survey of Nuclear Reactions. In: Experimental Nuclear Physics, Bd. II. Hrsg. E. SEGRÈ. John Wiley and Sons, New York 1953, S. 1.
18. R. RUBINSON: The Equations of Radioactive Transformation in a Neutron Flux. J. Chem. Physics **17** (1949) 542.
19. National Academy of Sciences, National Research Council, Nuclear Data Sheets. Washington 1958 – 1963.
20. D. J. HUGHES, J. A. HARVEY: Neutron Cross Sections. United States Atomic Energy Commission. McGraw-Hill Book Comp., New York 1955.
21. R. SERBER: Nuclear Reactions at High Energies, Phys. Rev. **72** (1947) 1114.
22. Nuclear Chemistry, Hrsg. L. YAFFE, Academic Press, New York 1968.

Übungen zu Kapitel 8

1. Die folgenden Kernreaktionen sollen zunächst in der Kurzschreibweise vervollständigt und anschließend in vollständiger Schreibweise mit Angabe der Massenzahlen und Ordnungszahlen formuliert werden:

a) $^{1}H(n,\gamma)$	e) $^{9}Be(p,d)$	i) $^{12}C(d,n)$
b) $^{2}H(n,\gamma)$	f) $^{9}Be(d,p)$	k) $^{14}N(\alpha,p)$
c) $^{7}Li(p,n)$	g) $^{9}Be(p,\alpha)$	l) $^{15}N(p,\alpha)$
d) $^{7}Li(p,\alpha)$	h) $^{11}B(d,\alpha)$	m) $^{16}O(d,n)$

2. Wie groß ist die Energie ΔE (Q-Wert) der folgenden Kernreaktionen

$^{34}S(n,\gamma)^{35}S$	$^{11}B(d,\alpha)^{9}Be$
$^{35}Cl(n,p)^{35}S$	$^{16}O(d,n)^{17}F$
$^{19}F(n,2n)^{18}F$	$^{12}C(\gamma,n)^{11}C$
$^{7}Li(p,n)^{7}Be$	$^{12}C(\alpha,n)^{15}O$
$^{9}Be(p,d)^{8}Be$	$^{16}O(t,n)^{18}F$

3. Man formuliere 10 verschiedene Kernreaktionen mit C–12 als Target und wähle eine exoergische und eine endoergische Reaktion aus.

4. Man formuliere verschiedene Kernreaktionen zur Darstellung von F–18 und diskutiere diese Reaktionen.

5. Man wähle geeignete Kernreaktionen aus zur Darstellung der folgenden Nuklide: Cl–36, Co–58, Co–60, Rb–83, Pm–147, Hg–197.

6. Man berechne die de Broglie-Wellenlänge und die absolute Temperatur für Neutronen der folgenden Energien: a) 0,025 eV (thermisch), b) 10 keV (mittelschnell), c) 10 MeV (schnell).

7. Wie groß ist die Schwellenenergie der folgenden Kernreaktionen:

$^{11}B(p,n)^{11}C$;	$^{23}Na(\gamma,n)^{22}Na$;
$^{18}O(p,n)^{18}F$;	$^{59}Co(\gamma,n)^{58}Co$;
$^{23}Na(p,n)^{23}Mg$;	$^{23}Na(n,2n)^{22}Na$;
$^{12}C(\gamma,n)^{11}C$;	$^{55}Mn(n,2n)^{54}Mn$;

8. Welchen Wert berechnet man näherungsweise für die Potentialschwelle U bei der Reaktion eines α-Teilchens mit N–14 bzw. mit Bi–209?

9. Zur Darstellung von Co–60 wird Kobaltmetall in einem Kernreaktor mit thermischen Neutronen bestrahlt.
   a) Welche beiden Kernreaktionen mit thermischen Neutronen müssen berücksichtigt werden?
   b) Welche Aktivität ist zu erwarten, wenn 10 g Kobaltblech 1 Jahr lang bei einem Neutronenfluß $\Phi = 10^{12}\,cm^{-2}\,s^{-1}$ bestrahlt werden?
   c) Wie groß ist die Sättigungsaktivität?

d) Wie lange muß das Kobaltblech bestrahlt werden, wenn eine spezifische Aktivität an Co–60 von 1 Ci/g erreicht werden soll? ($\sigma_{n,\gamma}$ für die Bildung von Co–60 19 b, für die Bildung von Co–60m 18 b)

10. Eine Goldfolie von 0,02 cm Dicke wird 5 min lang mit thermischen Neutronen bestrahlt. Dabei entsteht Au–198. Der Neutronenfluß beträgt 10^{12} cm^{-2} s^{-1}. Die Dichte von Gold ist 19,3 g cm^{-3}. Mit einer Zählanordnung, deren Gesamtzählausbeute 35% beträgt, wird die Aktivität an Au–198 zu 0,98 mCi/cm^2 Folie bestimmt. Man berechne den Einfangquerschnitt von Au–197 für thermische Neutronen.

11. Wie groß ist die Menge und die Aktivität an Pm–147, die durch Bestrahlung von 1 g Neodym natürlicher Isotopenzusammensetzung mit Neutronen bei einem Fluß $\Phi = 10^{14}$ cm^{-2} s^{-1} innerhalb einer Woche erhalten wird? Wie groß ist die Menge und die Aktivität an Pm–147 eine Woche nach Beendigung dieser Bestrahlung? ($\sigma_{n,\gamma}$ (Nd–146) = 2 b)

12. Welche Menge und Aktivität an Ru–106 wird durch Bestrahlung von 1 g Ruthenium natürlicher Isotopenzusammensetzung bei einem Neutronenfluß $\Phi = 2 \cdot 10^{15}$ cm^{-2} s^{-1} und einer Bestrahlungszeit von 1 Woche erhalten? ($\sigma_{n,\gamma}$ (Ru–104) = 0,48 b; $\sigma_{n,\gamma}$ (Ru–105) = 0,2 b; $\sigma_{n,\gamma}$ (Ru–106) = 0,15 b)

13. Wie groß sind die Energien ΔE für die einzelnen Schritte des Deuterium-Zyklus und des Kohlenstoff-Stickstoff-Zyklus?

9. Chemische Effekte von Kernreaktionen

9.1. Übersicht

In den vorausgehenden Kapiteln haben wir nur die Vorgänge ins Auge gefaßt, die bei Kernreaktionen innerhalb der Atomkerne stattfinden. Von einem radioaktiven Zerfall oder einer anderen Kernreaktion wird aber nicht nur der Atomkern betroffen, sondern auch die Elektronenhülle und damit die chemische Bindung. Die Energiebeträge, die bei Kernreaktionen umgesetzt werden, sind verhältnismäßig hoch, im allgemeinen von der Größenordnung 1 MeV. Bruchteile dieser Energie können in Form von kinetischer Energie oder in Form von Anregungsenergie auf die Atome übertragen werden. Danach unterscheidet man Rückstoßeffekte und Anregungseffekte.

Hohe kinetische Energie einzelner Atome bedeutet noch keine hohe Temperatur; denn der Temperaturbegriff ist mit der mittleren kinetischen Energie $\bar{E}_{\text{kin}}$ einer Vielzahl von Atomen oder Molekülen verknüpft. Nach der kinetischen Gastheorie gilt (vgl. Abschn. 8.10)

$$\bar{E}_{\text{kin}} = \frac{1}{2} m\overline{v^2} = \frac{3}{2} k_{\text{B}} T \text{ (3 Freiheitsgrade).}$$

T ist die absolute Temperatur (°K). Die einzelnen Moleküle besitzen verschiedene Geschwindigkeiten v und somit auch verschiedene kinetische Energien. $\overline{v^2}$, das mittlere Geschwindigkeitsquadrat, ist ein Maß für die Temperatur. Die wahrscheinlichste Geschwindigkeit v, die dem Maximum der Maxwellschen Geschwindigkeitsverteilung entspricht, beträgt $v = \sqrt{\frac{2}{3}\overline{v^2}}$. In Abweichung von dem durch die obige Gleichung festgelegten Temperaturbegriff kann man im übertragenen Sinne auch einem einzelnen Atom eine „Temperatur“ zuordnen, indem man feststellt, welcher Temperatur die kinetische Energie des Atoms entspricht. Man setzt die Geschwindigkeit des Atoms gleich

der wahrscheinlichsten Geschwindigkeit und erhält

$$E_{\text{kin.}} = \frac{1}{2} m v^2 \mathrel{\hat{=}} k_B T \tag{9.1}$$

bzw.

$$\begin{aligned} T \mathrel{\hat{=}} \frac{E_{\text{kin.}}}{k_B} &= 0{,}72436 \cdot 10^{16} \cdot E_{\text{kin.}} \text{ grad/erg} \\ &= 1{,}16049 \cdot 10^{4} \cdot E_{\text{kin.}} \text{ grad/eV.} \end{aligned} \tag{9.2}$$

Eine kinetische Energie von 1 eV entspricht somit einer Temperatur von rund 10^4 °K und eine kinetische Energie von 1 MeV einer Temperatur von rund 10^{10} °K. Da bei Kernreaktionen die betroffenen Atome Rückstoß- oder Anregungsenergien von der Größenordnung 1 eV bis 1 MeV erhalten können, erscheint die Bezeichnung „heiße Atome" gerechtfertigt. Man spricht deshalb auch von der „Chemie heißer Atome" („hot atom chemistry"), wenn man die chemischen Effekte von Kernreaktionen behandelt. Gelegentlich wird auch die Bezeichnung Rückstoßchemie („recoil chemistry") benutzt. Die heißen Atome sind zu ungewöhnlichen Reaktionen befähigt, die im Bereich normaler Temperaturen — wie sie bei chemischen Reaktionen erreicht werden — nicht auftreten. Die Untersuchung der chemischen Effekte von Kernreaktionen ist somit ein neuartiges und sehr interessantes Arbeitsgebiet der Chemie.

Wenn man die bei Kernreaktionen auftretenden Energiebeträge mit der Energie der chemischen Bindung vergleichen will, so ist es nützlich, daran zu erinnern, daß wir bei Kernreaktionen die Energie auf ein einzelnes Atom beziehen, bei chemischen Reaktionen jedoch auf eine größere Stoffmenge, im allgemeinen auf 1 Mol. Wir rechnen deshalb die Energie 1 eV auf 1 Mol um:

$$\begin{aligned} 1\,\text{eV} &= 1{,}602 \cdot 10^{-12}\,\text{erg} \\ &= 1{,}602 \cdot 10^{-12} \cdot 0{,}239 \cdot 10^{-10}\,\text{kcal} \\ &\mathrel{\hat{=}} 1{,}602 \cdot 10^{-12} \cdot 0{,}239 \cdot 10^{-10} \cdot 6{,}0225 \cdot 10^{23}\,\text{kcal/Mol} \\ &\mathrel{\hat{=}} 23{,}06\,\text{kcal/Mol.} \end{aligned} \tag{9.3}$$

Die Bindungsenergien zwischen Atomen bewegen sich zwischen etwa 10 und 100 kcal/Mol. Das entspricht etwa 0,4 bis 4 eV.

Chemische Effekte von Kernreaktionen wurden erstmals von SZILARD und CHALMERS 1934 bei der Bestrahlung von Äthyljodid mit

Neutronen gefunden. Die dabei auftretenden Reaktionen werden in Abschnitt 9.4. besprochen. Kurze Zeit später wurde festgestellt, daß auch beim β^--Zerfall von Pb–210, das in Form von Bleitetramethyl vorlag, chemische Veränderungen auftreten. Untersuchungen über die chemischen Effekte von Kernreaktionen in Festkörpern wurden von FERMI aufgenommen. LIBBY befaßte sich mit sauerstoffhaltigen Verbindungen wie Permanganaten, SEGRÈ beobachtete eine Änderung des Bindungszustandes beim Übergang von Br–80m in Br–80. Heute liegt eine große Zahl von Untersuchungen mit gasförmigen, flüssigen und festen Stoffen vor, so daß sich das Studium der chemischen Effekte von Kernreaktionen zu einem eigenen Arbeitsgebiet entwickelt hat.

Es ist sinnvoll, die bei Kernreaktionen auftretenden chemischen Effekte zu unterteilen in primäre Effekte, sekundäre Effekte und Folgereaktionen. Die primären Effekte finden innerhalb eines einzelnen Atoms statt, die sekundären Effekte im Bereich eines Atomverbandes. Diese Effekte treten unmittelbar nach der Kernreaktion auf (innerhalb von etwa 10^{-11} s). Im Anschluß daran finden Folgereaktionen der Reaktionsprodukte statt.

Die primären Effekte können in einem Rückstoß oder in einer Anregung des betreffenden Atoms bestehen. Infolge des Rückstoßes erhält der Kern eine gewisse kinetische Energie. Die Anregung betrifft die Elektronenhülle des Kerns; sie kann zum Beispiel durch eine Änderung der Ordnungszahl verursacht werden. Starke Rückstoßeffekte bedingen meist auch eine starke Anregung des Atoms, weil nicht alle Elektronen dem mit hoher kinetischer Energie davonfliegenden Kern folgen können; d. h., es tritt eine mehr oder weniger starke Ionisierung ein.

Die sekundären Effekte im Bereich des Atomverbandes hängen sehr stark von der chemischen Bindung und von dem Aggregatzustand ab. Die chemische Bindung kann als Folge des Rückstoßes oder der Anregung gesprengt werden. In Gasen und in Flüssigkeiten sind zunächst nur die Bindungen innerhalb des Moleküls betroffen. In Gasen ist die Reichweite der Rückstoßatome verhältnismäßig groß, in Flüssigkeiten und Festkörpern verhältnismäßig klein.

Das weitere Schicksal der heißen Atome wird erst durch die Folgereaktionen bestimmt. Molekülbruchstücke, die infolge von Kernreaktionen entstehen, können sich in Gasen und Flüssigkeiten gleichmäßig verteilen, während sie in Festkörpern oft auf Zwischengitterplätzen festgehalten werden und erst beim Erwärmen weiterreagieren kön-

nen. Insbesondere bei der Untersuchung der interessanten und vielfältigen chemischen Effekte von Kernreaktionen in festen Körpern ist es wichtig, die Umgebung des von der Kernreaktion betroffenen Atoms — d. h. das Kristallgitter mit seinen Zwischengitterplätzen und Fehlstellen — in die Betrachtung einzubeziehen.

Eine weitere Möglichkeit der Einteilung der Reaktionen, die durch ein heißes Atom hervorgerufen werden, ergibt sich auf Grund der Energie. Man unterscheidet heiße Reaktionen, epithermische Reaktionen und thermische Reaktionen. Heiße Reaktionen werden durch Atome sehr hoher Energie hervorgerufen; sie verlaufen statistisch — d. h. ohne Bevorzugung bestimmter Reaktionspartner oder Bindungen. Epithermische Reaktionen laufen nicht mehr nach den Gesetzen der Statistik ab; sie sind aber im Vergleich zu normalen chemischen Reaktionen ungewöhnlich. Thermische Reaktionen finden bei verhältnismäßig niedrigen Energien statt (< 1 eV) und entsprechen hinsichtlich ihres Verlaufes den bekannten chemischen Reaktionen. Bei den heißen und den epithermischen Reaktionen werden Radikale erzeugt; sie besitzen deshalb große Ähnlichkeit mit den Reaktionen, die unter dem Einfluß ionisierender Strahlung ablaufen (strahlenchemische Reaktionen, vgl. Kapitel 10).

Die primären und sekundären Reaktionen sind meist heiße Reaktionen; d. h., die Rückstoß- oder Anregungsenergie bzw. der Ionisierungsgrad entsprechen sehr hohen Temperaturen. Die Folgereaktionen spielen sich im epithermischen und thermischen Bereich ab. Die heißen Atome, die eine hohe Rückstoßenergie besitzen und deshalb unter Sprengung der Bindung fortfliegen, können durch Zusammenstöße eine Kaskade von Reaktionen auslösen, bis ihre kinetische Energie verbraucht ist. Dann können sie im thermischen Bereich weiterreagieren und z. B. nach Substitutionsreaktionen wieder in Form der ursprünglichen chemischen Verbindung vorliegen. Die thermischen Reaktionen sind entscheidend für den chemischen Zustand, in dem das heiße Atom schließlich vorgefunden wird.

Den Bruchteil der durch eine bestimmte Kernreaktion erzeugten Atome, der in Form der vorgelegten chemischen Verbindung wiedergefunden wird, nennt man Retention. Der Begriff der Retention ist für die praktische Behandlung der chemischen Effekte von Kernreaktionen wichtig. Die Retention kann nach dem oben Gesagten entweder dadurch zustande kommen, daß die chemische Bindung bei der Kernreaktion erhalten bleibt (primäre Retention), oder dadurch, daß das heiße Atom nach Spaltung der Bindung durch Substitution oder Re-

kombination wieder eine neue Bindung eingeht (sekundäre Retention). Die Summe „primäre Retention“ + „sekundäre Retention“ wird auch als „Gesamtretention“ bezeichnet.

9.2. Rückstoßeffekte

Eine mononukleare Reaktion (radioaktiver Zerfall oder Spontanspaltung),

$$A \longrightarrow B + y + \Delta E, \tag{9.4}$$

ist ebenso wie eine binukleare Reaktion,

$$A + x \longrightarrow (C) \longrightarrow B + y + \Delta E, \tag{9.5}$$

oder eine Kernspaltung stets von einem Rückstoßeffekt begleitet. Die Gesamtenergie ΔE der Kernreaktion, die nach den Gln. (5.2) und (5.3) bzw. (8.12) ermittelt werden kann, verteilt sich auf die beiden Reaktionsprodukte:

$$\Delta E = E_1 + E_2. \tag{9.6}$$

Das Nuklid B, das den Rückstoß erhält, geht beim radioaktiven Zerfall direkt aus dem Nuklid A hervor, bei der binuklearen Kernreak-

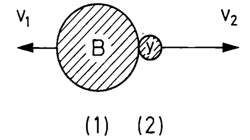


Abb. (9–1) Zerfall eines Nuklids bzw. eines Zwischenkerns (Rückstoßeffekt beim radioaktiven Zerfall).

tion im allgemeinen aus dem Zwischenkern C. In Abb. (9–1) ist dieser Zerfallsprozeß schematisch aufgezeichnet. Durch Anwendung des Impulssatzes folgt

$$m_1 v_1 = m_2 v_2. \tag{9.7}$$

Wird bei dem Zerfall ein Teilchen emittiert, so erhält man durch Quadrieren und Einsetzen der kinetischen Energie $E = \frac{m}{2} v^2$

$$m_1 E_1 = m_2 E_2 \tag{9.8}$$

bzw.

$$E_1 = \frac{m_2}{m_1} E_2; \tag{9.9}$$

d. h., die Energien verhalten sich umgekehrt wie die Massen. Wenn die Geschwindigkeit v_2 des Teilchens sehr hoch ist, muß man den Unterschied zwischen seiner bewegten Masse m_2 und seiner Ruhemasse m_2^0 berücksichtigen:

$$m_2 = \frac{m_2^0}{\sqrt{1 - \left(\frac{v}{c}\right)^2}}. \tag{9.10}$$

Führt man an Stelle der Geschwindigkeit v_2 die kinetische Energie E_2 ein, so gilt

$$m_2 = \frac{m_2^0}{\sqrt{1 - \frac{2 E_2}{m_2 c^2}}} \tag{9.11}$$

bzw.

$$m_2 = \frac{E_2}{c^2} + \sqrt{(m_2^0)^2 + \left(\frac{E_2}{c^2}\right)^2} \tag{9.12}$$

$\frac{E_2}{c^2}$ ist das Massenäquivalent der Energie. Damit folgt für die Rückstoßenergie E_1, die das Nuklid B erhält:

$$E_1 = \left(\frac{E_2}{c^2} + \sqrt{(m_2^0)^2 + \left(\frac{E_2}{c^2}\right)^2}\right) \frac{E_2}{m_1}. \tag{9.13}$$

Nach dieser Gleichung läßt sich E_1 bei bekannter Energie E_2 des emittierten Teilchens berechnen.

Wird beim radioaktiven Zerfall oder bei einer binuklearen Reaktion ein γ-Quant emittiert, so gilt nach dem Impulssatz

$$m_1 v_1 = \frac{E_\gamma}{c}. \tag{9.14}$$

Daraus erhält man durch Quadrieren und Einsetzen der kinetischen Energie E_1

$$E_1 = \frac{E_\gamma^2}{2 m_1 c^2} = 537 \frac{E_\gamma^2}{m_1} \text{ eV } [m_1 \text{ in ame}, E_\gamma \text{ in MeV}]. \tag{9.15}$$

Diese Gleichung hat Ähnlichkeit mit Gl. (9.9), wenn man berücksichtigt, daß $\frac{E_\gamma}{c^2} = m_\gamma$ das Massenäquivalent des Photons ist; der Faktor $\frac{1}{2}$ tritt auf, weil das Photon keine Ruhemasse, sondern nur bewegte Masse besitzt.

Um die Anwendung der vorstehenden Gleichungen zu erläutern, werden einige Beispiele behandelt.

1. Beispiel: α-Zerfall

$$^{212}\text{Po (Th C')} \xrightarrow[0{,}3\,\mu\text{s}]{\alpha(8{,}785)} {}^{208}\text{Pb} \tag{9.16}$$

Die Energie E_2 der emittierten α-Teilchen beträgt $E_2 = 8{,}785$ MeV. Das Massenäquivalent der Energie der α-Teilchen ist

$$\frac{E_2}{c^2} = \frac{8{,}785}{931{,}5} = 0{,}943 \cdot 10^{-2} \text{ ame};$$

das sind nur 0,24% der Ruhemasse. Es genügt deshalb, nach Gl. (9.9) zu rechnen:

$$E_1 \approx \frac{4}{208} \cdot 8{,}785 = 0{,}169 \text{ MeV}. \tag{9.17}$$

Diese Rückstoßenergie ist um viele Größenordnungen höher als die Energie einer chemischen Bindung. Da die Energie des α-Zerfalls im allgemeinen größer ist als 1 MeV, werden primär alle chemischen Bindungen gesprengt.

2. Beispiel: β^--Zerfall

$$^{90}\text{Sr} \xrightarrow[28{,}1\text{ a}]{\beta^-(0{,}546)} {}^{90}\text{Y} \tag{9.18}$$

Die Energie der emittierten β^--Teilchen schwankt zwischen dem Wert 0 und der Maximalenergie 0,546 MeV. Gleichzeitig mit dem β^--Teilchen wird ein Antineutrino ausgesandt ($E_{\beta^-} + E_{\bar{\nu}} = 0{,}546$ MeV). Die Rückstoßenergie, die das entstehende Y–90 erhält, hängt ab von der Energie des β^--Teilchens und des Antineutrinos sowie von dem Winkel, unter dem beide emittiert werden (vgl. Abb. (9–2)). Die Grenzfälle, daß der Kern keine Rückstoßenergie oder die maximale Rück-

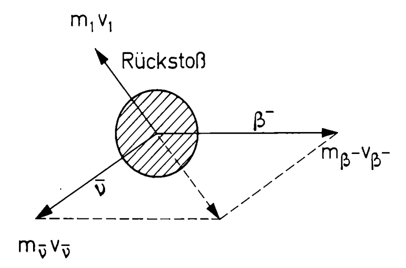


Abb. (9–2) Emission eines β^--Teilchens und eines Antineutrinos beim β^--Zerfall.

stoßenergie E_1(max) erhält, treten sehr selten ein. Das Massenäquivalent der Energie ist für Elektronen verhältnismäßig hoch und kann im allgemeinen nicht vernachlässigt werden. Es beträgt im vorliegenden Fall $E_2\,(\text{max})/c^2 = 0{,}546/931{,}5 = 0{,}586 \cdot 10^{-3}$ ame; das sind 107% der Ruhemasse des Elektrons. Aus Gl. (9.13) folgt für die maximale Rückstoßenergie

$$E_1\,(\text{max}) =$$
$$= \left(0{,}586 \cdot 10^{-3} + \sqrt{(0{,}5486 \cdot 10^{-3})^2 + (0{,}586 \cdot 10^{-3})^2}\right)\frac{0{,}546}{89{,}9}$$
$$E_1\,(\text{max}) = 8{,}43 \text{ eV}. \tag{9.19}$$

Dieser Wert ist größer als die Energie einer chemischen Bindung. In den meisten Fällen erhält der Kern allerdings nur einen Bruchteil dieser Energie. Wenn β-Strahlung hoher Energie ausgesandt wird, geht deshalb im allgemeinen primär die chemische Bindung entzwei. Besitzt die β-Strahlung dagegen niedrige Energie, so reicht die Rückstoßenergie — insbesondere bei schweren Kernen — nicht zur Spaltung der chemischen Bindung aus.

In Abb. (9–3) ist die maximale Rückstoßenergie beim β-Zerfall als Funktion der Massenzahl A für verschiedene Zerfallsenergien aufgezeichnet.

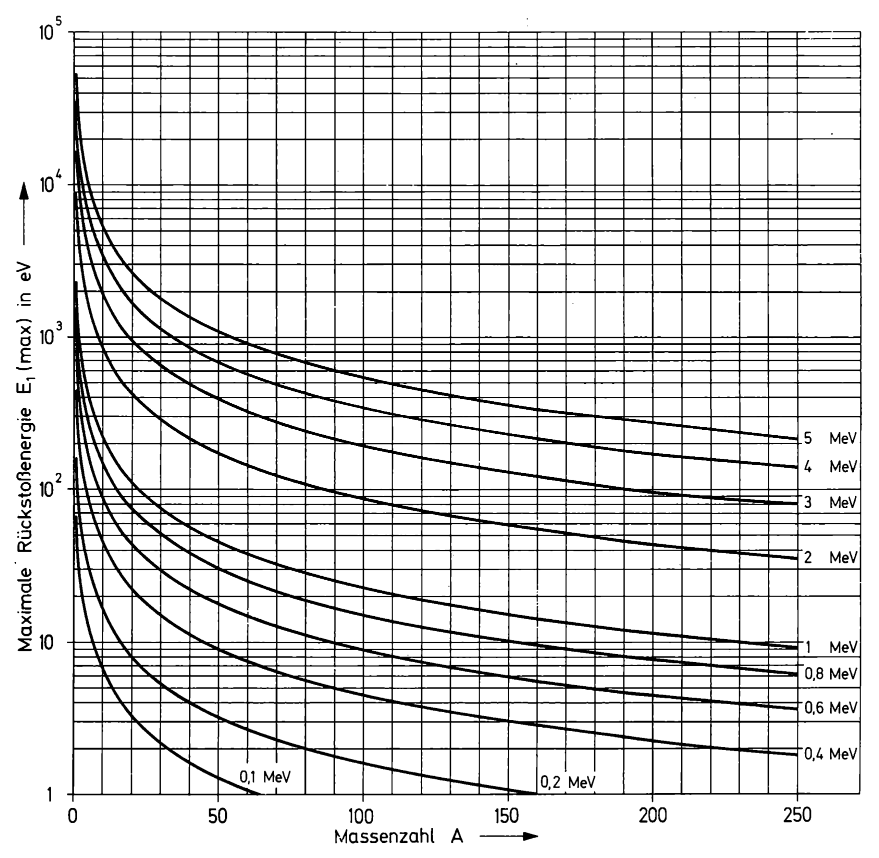


Abb. (9–3) Rückstoßenergie beim β-Zerfall als Funktion der Massenzahl für verschiedene Energien der β-Teilchen.

3. Beispiel: γ-Zerfall — isomere Umwandlung

$$^{80m}Br \xrightarrow[4,4\,h]{I.\,U.\,(0,049;\,0,037)} {}^{80}Br \tag{9.20}$$

Wir betrachten nur den Rückstoß infolge der Emission eines γ-Quants mit der Energie 0,049 MeV. Die Rückstoßenergie beträgt in diesem Fall nach Gl. (9.15)

$$E_1 = \frac{(0,049)^2}{2 \cdot 79,9 \cdot 931,5} = 0,016\ \text{eV}. \tag{9.21}$$

Sie reicht nicht zur Spaltung einer chemischen Bindung aus. Dies gilt für alle isomeren Umwandlungen mit geringer Zerfallsenergie.

Wenn der γ-Zerfall in unmittelbarem Anschluß an einen α-Zerfall oder einen β-Zerfall erfolgt, so überlagern sich die Rückstoßeffekte. Dabei addieren sich die Impulse, die der Kern infolge des α-Zerfalls

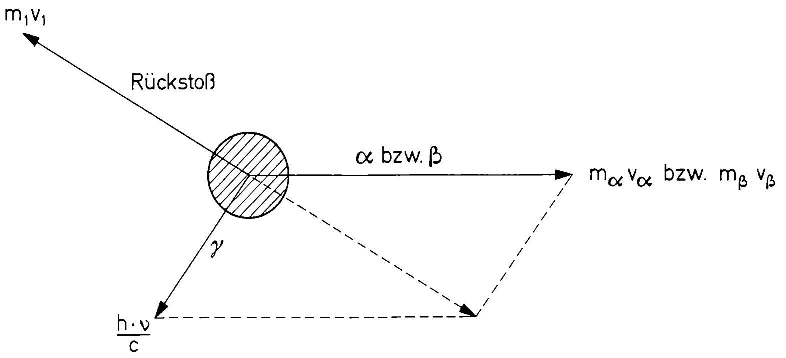


Abb. (9–4) Emission von α-Teilchen bzw. β-Teilchen und γ-Quanten.

bzw. β-Zerfalls und der Emission eines γ-Quants erhält, vektoriell (vgl. Abb. (9–4)). Dasselbe gilt für den Fall, daß mehrere γ-Quanten emittiert werden. Die Überlagerung der Rückstoßeffekte kann zu einer Vergrößerung oder einer Verminderung der infolge des α- bzw. β-Zerfalls auftretenden Rückstoßenergie führen, je nachdem, unter welchen Winkeln die Teilchen bzw. Quanten ausgesandt werden.

In Abb. (9–5) ist die Rückstoßenergie, die ein Kern bei Aussendung eines γ-Quants erhält, als Funktion der Massenzahl aufgetragen. Bei leichten Kernen und hoher Energie der γ-Quanten ist die Rückstoßenergie im allgemeinen größer als die Energie der chemischen Bindung.

4. Beispiel: (n, γ)-Reaktionen

$$^{37}\mathrm{Cl}\,(n,\gamma)\,^{38}\mathrm{Cl} \tag{9.22}$$

Die Energie, die bei dieser Kernreaktion frei wird, ist gleich der Bindungsenergie des Neutrons und kann nach Gl. (8.12) bestimmt werden:

$$\begin{aligned}\Delta E &= (36{,}965898 + 1{,}008665 - 37{,}96800) \cdot 931{,}5\,\mathrm{MeV} \\ &= 6{,}11\,\mathrm{MeV}.\end{aligned} \tag{9.23}$$

(Bei Verwendung thermischer Neutronen ist die Energie der Neutronen vernachlässigbar klein.) Die Anregungsenergie wird in Form von einem oder mehreren γ-Quanten abgegeben. Den wesentlichen Teil

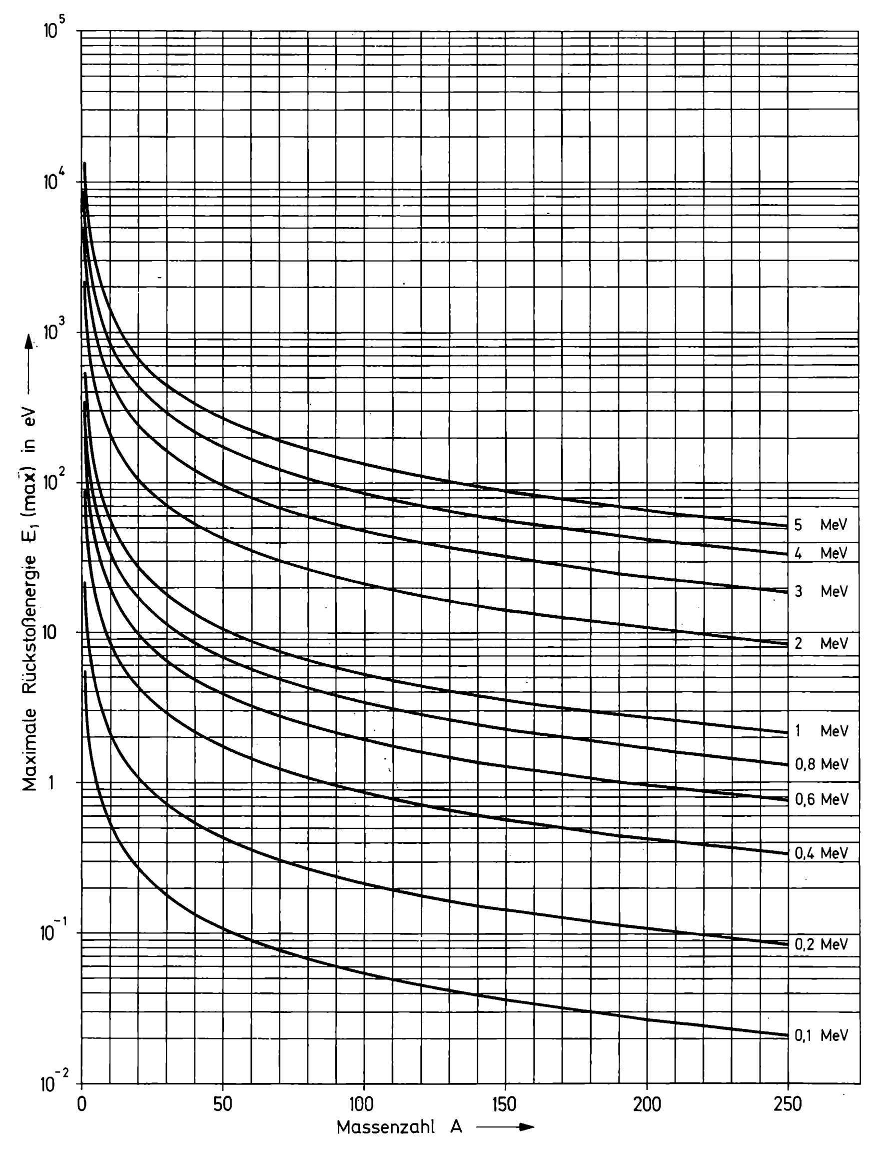


Abb. (9–5) Rückstoßenergie bei der Emission von γ-Quanten verschiedener Energie als Funktion der Massenzahl.

der Energie erhalten die γ-Quanten; nur ein sehr geringer Anteil wird als Rückstoßenergie auf den Kern übertragen: $E_1 \ll E_\gamma \approx \Delta E$. Nach Gl. (9–15) folgt für die maximale Rückstoßenergie

$$E_1 = \frac{(6{,}11)^2}{2 \cdot 37{,}968 \cdot 931{,}5} = 528\,\mathrm{eV}. \tag{9.24}$$

Die Rückstoßenergie ist kleiner, wenn mehrere γ-Quanten in verschiedenen Richtungen emittiert werden. Sie ist jedoch im allgemeinen größer als die Energie einer chemischen Bindung. Man darf also damit rechnen, daß in den meisten Fällen die chemische Bindung primär gesprengt wird. Dies gilt für die meisten (n, γ)-Reaktionen.

Der Rückstoßeffekt bei (n, γ)-Reaktionen hat große praktische Bedeutung. Der Produktkern hat in diesem Falle die gleiche Ordnungszahl wie das vorgelegte Nuklid. Wenn infolge der Emission des γ-Quants die chemische Bindung entzwei geht, ist bei der Aufarbeitung in günstigen Fällen eine Abtrennung des Produktkerns möglich. Reaktionen dieser Art werden als Szilard-Chalmers-Reaktionen bezeichnet; sie werden in Abschnitt 9.6. besprochen.

5. Beispiel: (n, p)-Reaktionen

$$^{14}\mathrm{N}\,(\mathrm{n,p})\,^{14}\mathrm{C} \tag{9.25}$$

Nach Gl. (8.12) beträgt die Energie, die bei dieser Kernreaktion frei wird

$$\begin{aligned} \Delta E &= (14{,}003074 + 1{,}008665 - 14{,}003242 - 1{,}007825) \cdot 931{,}5\,\mathrm{MeV} \\ &= 0{,}626\,\mathrm{MeV}. \end{aligned} \tag{9.26}$$

(Die Energie der thermischen Neutronen, welche diese Kernreaktion auslösen, wird wiederum vernachlässigt.) Die Energie ΔE verteilt sich auf die beiden Reaktionsprodukte: $\Delta E = E_1 + E_2$. Aus Gl. (9.9)folgt

$$E_1 = \frac{m_2}{m_1}(\Delta E - E_1) \tag{9.27}$$

bzw.

$$\begin{aligned} E_1 &= \frac{\Delta E}{\dfrac{m_1}{m_2} + 1} = \frac{0{,}626}{\dfrac{14{,}003242}{1{,}007825} + 1} = 0{,}042\,\mathrm{MeV} \\ E_2 &= 0{,}584\,\mathrm{MeV}. \end{aligned} \tag{9.28}$$

Das Massenäquivalent der kinetischen Energie des Protons ist $E_2/c^2 = 0{,}584/931{,}5 = 0{,}63 \cdot 10^{-3}$ ame; das sind nur etwa 0,06% seiner Ru-

hemasse. Der Unterschied zwischen bewegter Masse und Ruhemasse ist somit vernachlässigbar klein. Die Rückstoßenergie des C–14 (42 keV) ist sehr hoch; ihr hält keine chemische Bindung stand.

Tabelle 9.1.
Rückstoßenergie bei der Emission von α-Teilchen, Protonen, Neutronen, Elektronen und γ-Quanten

Energie des emittierten Teilchens in MeV	Massenzahl A	Rückstoßenergie α	p bzw. n	β	γ
0,1	10	40 keV	10 keV	6,7 eV	0,54 eV
	50	8 keV	2 keV	1,3 eV	0,11 eV
	100	4 keV	1 keV	0,7 eV	0,05 eV
	200	2 keV	0,5 keV	0,3 eV	0,03 eV
0,3	10	120 keV	30 keV	28,7 eV	4,83 eV
	50	24 keV	6 keV	5,7 eV	0,97 eV
	100	12 keV	3 keV	2,9 eV	0,48 eV
	200	6 keV	1,5 keV	1,4 eV	0,24 eV
1,0	10	400 keV	101 keV	228 eV	53,7 eV
	50	80 keV	20 keV	46 eV	10,7 eV
	100	40 keV	10 keV	23 eV	5,4 eV
	200	20 keV	5 keV	11 eV	2,7 eV
3,0	10	1201 keV	302 keV	1946 eV	483 eV
	50	240 keV	60 keV	389 eV	97 eV
	100	120 keV	30 keV	195 eV	48 eV
	200	60 keV	15 keV	97 eV	24 eV
10,0	10	4003 keV	1008 keV	21,5 keV	5,1 keV
	50	800 keV	202 keV	4,3 keV	1,1 keV
	100	400 keV	101 keV	2,1 keV	0,5 keV
	200	200 keV	50 keV	1,1 keV	0,3 keV

In Tabelle 9.1. sind die Rückstoßenergien bei der Emission von α-Teilchen, Protonen, Neutronen, β-Teilchen und γ-Quanten für verschiedene Massenzahlen und verschiedene Energien der emittierten Teilchen zum Vergleich zusammengestellt. Bei der Emission schwerer Teilchen (α-Teilchen, Protonen, Neutronen) ist die Rückstoßenergie stets recht hoch und größer als die Energie der chemischen Bindung. Bei der Emission von Leptonen (Elektronen, Positronen, γ-Quanten)

ist sie um einige Größenordnungen niedriger; sie kann größer oder kleiner sein als die Energie der chemischen Bindung.

Wenn Teilchen hoher Energie als Geschosse für Kernreaktionen verwendet werden, so wird außerdem durch den Einfang dieser Teilchen auf die Kerne des Targets ein Impuls übertragen, dessen Größe nach Gl. (8.13) berechnet werden kann. Die kinetische Energie, die der Kern durch den Einfang des Geschoßteilchens erhält, ergibt sich in Übereinstimmung mit Gl. (8.14) zu

$$E_1 = E_x\left(\frac{M_x}{M_A + M_x}\right) = E_x - E^*. \tag{9.29}$$

So wird beim Einfang eines Neutrons von 1 MeV durch ein N–14-Atom eine kinetische Energie von

$$E_1 \approx \frac{1}{14 + 1} \approx 67\,\text{keV} \tag{9.30}$$

übertragen, die weit größer ist als die Energie einer chemischen Bindung.

9.3. Anregungseffekte

Die Anregung kommt durch die Überlagerung verschiedener Effekte zustande. Zum besseren Verständnis kann man diese Effekte folgendermaßen unterteilen:

a) Anregungseffekte infolge des Rückstoßes;
b) Anregungseffekte infolge Änderung der Ordnungszahl;
c) Anregungseffekte infolge von Elektroneneinfang oder innerer Konversion.

Diese Effekte führen zur Ionisierung, Aussendung von Elektronen aus der Elektronenhülle („Auger-Elektronen“) und zu Fluoreszenzerscheinungen. Infolge der Anregung sind sekundäre Reaktionen innerhalb des betreffenden Atomverbandes und vielfältige Folgereaktionen der Ionen oder angeregten Moleküle möglich.

Erfährt ein Atomkern infolge einer Kernreaktion einen Rückstoß, so erhebt sich die Frage nach dem Verhalten der Elektronenhülle. Die Elektronen der inneren Schalen werden bevorzugt den Kern begleiten; die Elektronen der äußeren Schalen dagegen — insbesondere die Valenzelektronen — können in mehr oder weniger großem Umfang

zurückbleiben. Dies führt zu einer Ionisierung des betreffenden Rückstoßatoms. Auch infolge der Wechselwirkung mit Nachbaratomen kann das Rückstoßatom Elektronen verlieren. Der Umfang der Ionisierung hängt ab von der Rückstoßenergie, der Bindungsfestigkeit der Elektronen, dem Bindungszustand des betreffenden Atoms und dem Aggregatzustand der Substanz. So ist bei hoher Rückstoßenergie auch eine höhere Ionisierung zu erwarten; außerdem wird in einer festen Substanz die Ionisierung eines Rückstoßatoms im allgemeinen höher sein als in einem Gas. Experimentell hat man etwa 1- bis 20-fach positiv geladene Ionen gefunden.

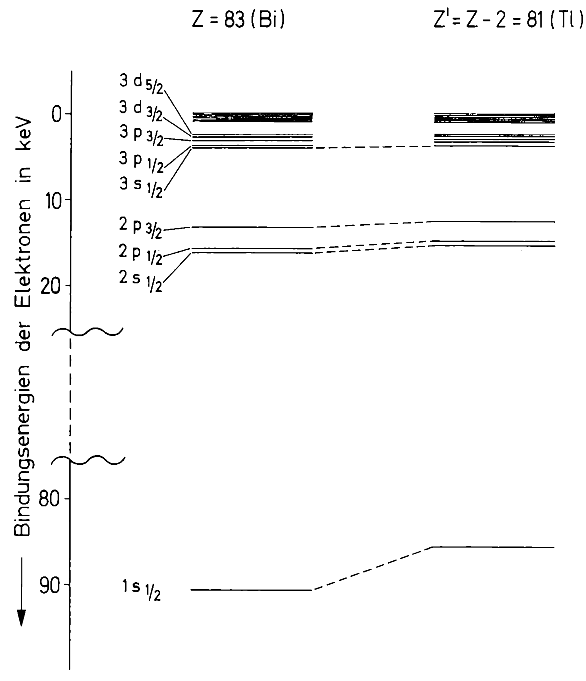


Abb. (9–6) Expansion der Elektronenhülle beim α-Zerfall.

Die Änderung der Ordnungszahl führt ebenfalls zu Anregungseffekten. Beim α-Zerfall erniedrigt sich die Ordnungszahl um 2 Einheiten: $Z' = Z - 2$. Dies bedingt eine Expansion der Elektronenhülle (vgl. Abb. (9–6)). Außerdem sind zwei Elektronen überflüssig geworden. Wie wir in Abschnitt 9.2. feststellten, ist die Rückstoßenergie beim α-Zerfall so hoch, daß primär alle chemischen Bindungen zwischen dem Rückstoßatom und seinen Nachbaratomen gesprengt werden. Die Anregungseffekte infolge Änderung der Ordnungszahl sind deshalb beim α-Zerfall von untergeordneter Bedeutung. Beim β-Zerfall können

die Anregungseffekte dagegen eine wesentliche Rolle spielen, insbesondere dann, wenn die Energie der β-Strahlung verhältnismäßig gering ist. Der β^--Zerfall führt zu einer Erhöhung der Ordnungszahl um eine Einheit: $Z' = Z + 1$; dies bedingt eine Kontraktion der Elektronenhülle (vgl. Abb. (9–7)). Außerdem fehlt ein Elektron. Der β^+-Zerfall bewirkt die Erniedrigung der Ordnungszahl um eine Einheit: $Z' = Z - 1$, was zu einer Expansion der Elektronenhülle führt.

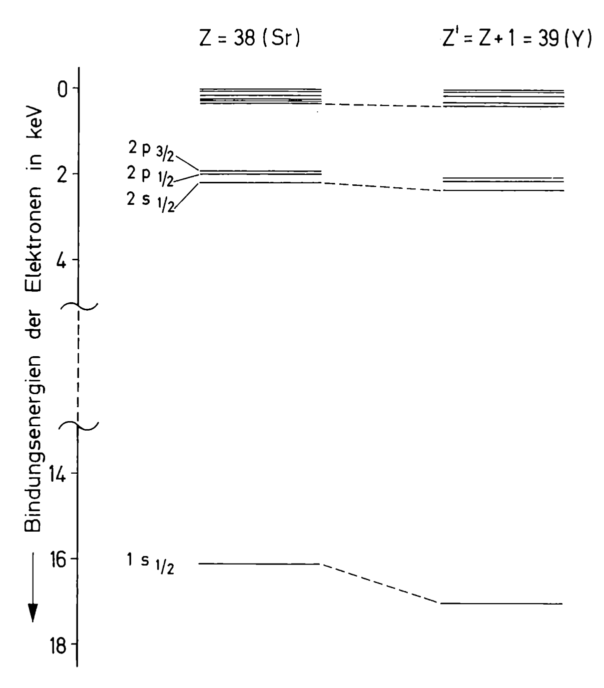


Abb. (9–7) Kontraktion der Elektronenhülle beim β^--Zerfall.

Bei der Expansion der Elektronenhülle (α-Zerfall, β^+-Zerfall) müssen die Elektronen aus ihrer Umgebung Energie aufnehmen, um die Energieniveaus des neu entstandenen Atoms zu besetzen. Dieser Fall ist weniger interessant. Bei der Kontraktion der Elektronenhülle dagegen (β^--Zerfall) wird Energie abgegeben; denn die Elektronen befinden sich unmittelbar nach dem β^--Zerfall auf Zuständen höherer Energie, als der neuen Ordnungszahl entspricht — d. h., sämtliche Elektronen der Elektronenhülle sind angeregt. Diese Anregungsenergie der Elektronenhülle ist verhältnismäßig groß. Unmittelbar nach dem β^--Zerfall eines Zinnisotops ($Z = 50$) beträgt sie beispielsweise etwa 107 eV. Sie wird durch Emission von Elektronen aus der Elektronenhülle abgegeben; d. h., als Folge der β^--Umwandlung findet eine

Ionisierung statt. Die aus den verschiedenen Elektronenzuständen emittierten Elektronen werden als „Auger"-Elektronen bezeichnet, in Anlehnung an die Arbeiten des Franzosen AUGER. Nach der Elektronenemission werden die Lücken in den inneren Schalen wieder aufgefüllt. Dabei werden Lichtquanten (charakteristische Röntgenstrahlung oder sichtbare Strahlung) ausgesandt.

Beim β-Zerfall entsteht ein isobares Nuklid, dessen chemische Eigenschaften im allgemeinen von denen des Mutternuklids verschieden sind. (Eine Ausnahme bilden die Lanthaniden und ein Teil der Actiniden.) Wenn die Bindung zu den Nachbaratomen durch den Rückstoß nicht entzweigegangen ist, so befindet sich das Tochternuklid zwar noch am gleichen Ort, aber in einem Bindungszustand, der ihm meistens „chemisch fremd" ist. Beispiele dafür sind

$$^{14}CH_3-CH_3 \xrightarrow[5730\,a]{\beta^-\,(0{,}156)} (^{14}NH_3-CH_3)^+ \quad \begin{cases} \swarrow \; ^{14}NH_3 + CH_3^+ \\ \text{oder} \\ \searrow \; ^{14}NH_2^+ + CH_4 \end{cases} \tag{9.31}$$

$$^{35}SO_2Cl_2 \xrightarrow[88\,d]{\beta^-\,(0{,}167)} (^{35}ClO_2Cl_2)^+ \quad \begin{cases} \swarrow \; ^{35}ClO_2^+ + Cl_2 \\ \text{oder} \\ \searrow \; ^{35}ClO_2 + Cl_2^+ \end{cases} \tag{9.32}$$

Nur selten befindet sich das durch β^--Zerfall entstandene Tochternuklid in einem chemisch stabilen Zustand:

$$^{212}Pb^{2+} \xrightarrow{\beta^-} {}^{212}Bi^{3+} \tag{9.33}$$

$$^{14}CO \xrightarrow{\beta^-} {}^{14}NO^+ \tag{9.34}$$

Hinsichtlich der Lebensdauer des durch Änderung der Ordnungszahl verursachten angeregten Zustandes kann man den isothermen und den adiabatischen Zerfall diskutieren. Beim isothermen Zerfall würde die Anpassung der Elektronen an die neue Ordnungszahl so

rasch erfolgen, daß die chemische Bindung nicht beeinflußt wird; d. h., es entstünde praktisch momentan ein Tochternuklid im Grundzustand. Beim adiabatischen Zerfall wird die Anregungsenergie auf alle Elektronen übertragen; d. h., es entsteht ein Tochternuklid im angeregten Zustand, der eine endliche Lebensdauer hat. Alle bisherigen experimentellen Ergebnisse sprechen für den adiabatischen Zerfall. So wurden in chemisch inerten Systemen (Edelgase) etwa 10^{-6} s nach dem radioaktiven Zerfall Röntgenstrahlen oder sichtbares Licht gemessen. Diese Zeit entspricht der Lebensdauer des angeregten Zustandes. Beim Zerfall von Kr–85 wurden 79,2% des entstandenen Rb–85 als Rb^{+}-Ionen, 10,9% als Rb^{2+}-Ionen und außerdem höhere Ionen bis Rb^{10+} gefunden. Dies spricht ebenfalls für den adiabatischen Zerfall. Beim Zerfall von ^{3}HH entsteht zu 93% $^{3}HeH^{+}$. Für die Bildung dieser Ionen können Rückstoßeffekte nicht verantwortlich sein; denn die maximale Rückstoßenergie beträgt nur 0,82 eV, die Ionisierungsenergie des ^{3}HeH aber etwa 2 eV. Durch diese Versuchsergebnisse ist sichergestellt, daß die Änderung der Ordnungszahl tatsächlich zur Bildung von Ionen bzw. angeregten Zuständen führt.

Die hier beschriebenen Effekte, die durch die Änderung der Ordnungszahl verursacht werden, treten bei der Emission neutraler Teilchen (z. B. γ-Quanten) nicht auf.

Im Falle des Elektroneneinfangs (K-Strahlung) und der inneren Konversion findet ebenfalls eine Anregung statt. In beiden Fällen verschwindet ein Elektron aus einer inneren Schale; die entstehende Lükke wird unter Aussendung charakteristischer Röntgenstrahlung durch ein Elektron aus einer höheren Schale aufgefüllt. Im Endergebnis fehlt ein Valenzelektron. Dies kann zum Bruch der chemischen Bindung führen. Der Elektroneneinfang ist stets mit einer Änderung der Ordnungszahl verknüpft: $Z' = Z - 1$; man kann deshalb nicht unterscheiden, ob die beobachteten chemischen Effekte auf der Expansion der Elektronenhülle infolge Änderung der Ordnungszahl oder auf dem Verschwinden eines Elektrons beruhen. Bei der inneren Konversion dagegen bleibt die Ordnungszahl erhalten. Die in diesem Falle beobachteten chemischen Effekte beruhen entweder auf dem Rückstoß oder auf dem Verschwinden eines Elektrons. Ein eingehend untersuchtes Beispiel ist die isomere Umwandlung des ^{80m}Br:

$$^{80m}\mathrm{Br} \xrightarrow{\text{I. U. } (0{,}049;\, 0{,}037)} {}^{80}\mathrm{Br} \tag{9.35}$$

Die Energie dieser Umwandlung beträgt nur 49 bzw. 37 keV. Im ersten

Fall beträgt der Konversionskoeffizient etwa 1,6, im zweiten Fall etwa 300. Die Rückstoßenergie bei der Aussendung eines γ-Quants von 49 keV haben wir bereits im vorausgehenden Abschnitt berechnet (Gl. (9.21)); sie beträgt nur 0,016 eV. Diese Energie reicht zum Beispiel nicht aus zur Sprengung einer C–Br-Bindung (59 kcal/Mol $\triangleq$ $\triangleq$ 2,6 eV). Für die Rückstoßenergie bei der Aussendung eines K-Elektrons berechnet man 0,43 eV und bei der Aussendung eines L-Elektrons 0,58 eV. Auch diese Energiebeträge genügen nicht zur Spaltung einer C–Br-Bindung. Tatsächlich beobachtet man aber, daß diese Bindung bei der isomeren Umwandlung des ^{80m}Br aufbricht. Schüttelt man nämlich beispielsweise Butylbromid, das ^{80m}Br enthält, mit Wasser, so findet man den Hauptteil des ^{80}Br ($t_{1/2} = 18$ min) — frei von dem isomeren ^{80m}Br ($t_{1/2} = 4{,}4$ h) — in der wässrigen Phase. Ähnliche Experimente wurden mit anderen Verbindungen ausgeführt; dabei wurden die in Tabelle 9.2. zusammengestellten Werte erhalten. Daraus muß man schließen, daß die innere Konversion zum Bruch der

Tabelle 9.2.
Spaltung der Bindung bei der inneren Konversion des ^{80m}Br

Bestrahlte Substanz	Anteil an freiem Brom in %	Retention in %
HBr (Gas)	75	25
CF_3Br (Gas)	99	1
CH_3Br (Gas)	94	6
$CH_3Br + Br_2$ (fl.)	94	6
CCl_3Br (Gas)	93	7
$CCl_3Br + Br_2$ (fl.)	87	13
$C_6H_5Br + Br_2$ (fl.)	87	13
$[Co(NH_3)_5Br]^{++}$ (aq.)	100	0
$[Co(NH_3)_5Br](NO_3)_2$(fest)	86	14
$[PtBr_6]^{--}$ (aq.)	47	53
$(NH_4)_2[PtBr_6]$ (fest)	0	100

Bindung führt. Interessant ist, daß im Falle des festen Ammoniumhexabromoplatinat(IV) die Bindung erhalten bleibt. Bei dieser Komplexverbindung wird im festen Zustand vermutlich das fehlende Elektron genügend rasch ergänzt.

Wie wir gesehen haben, treten bei folgenden Umwandlungen Lücken in den inneren Elektronenschalen auf: β^--Zerfall, Elektronen-

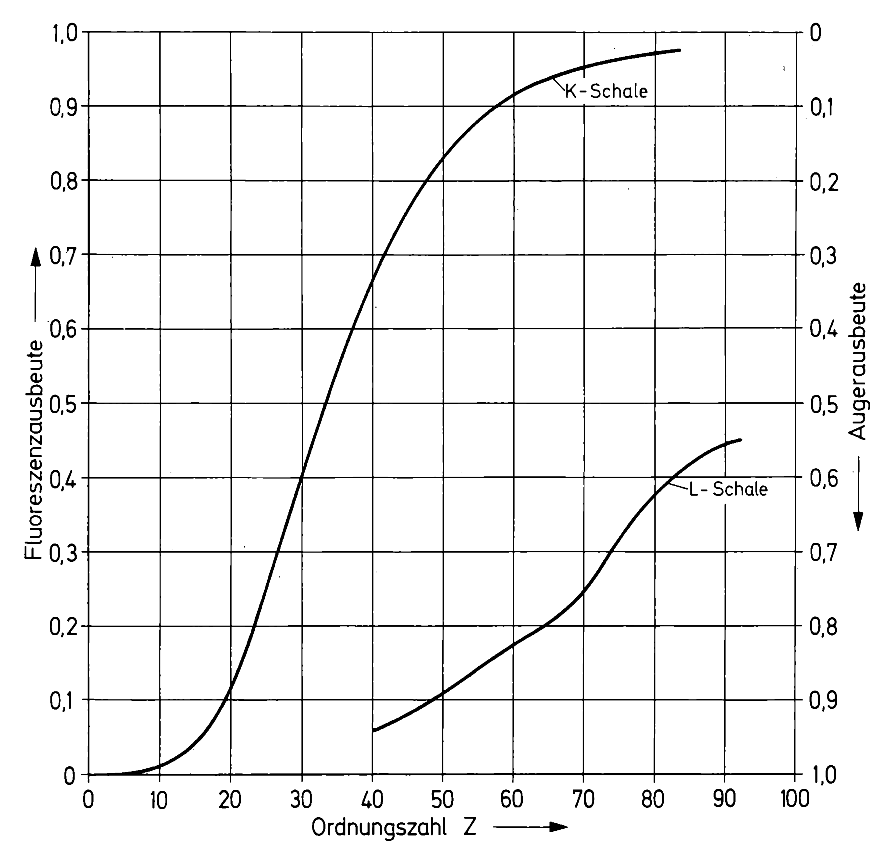


Abb. (9–8) Fluoreszenzausbeute ω und „Auger"-Ausbeute $1-\omega$ als Funktion der Ordnungszahl für die K- und L-Schale. Nach E. H. S. Burshop: The Auger Effect and other Radiationless Transitions. Cambridge University Press, London 1952.

einfang und innere Konversion. Die Lücken werden durch Elektronen aus einer höheren Schale aufgefüllt; dabei wird charakteristische Röntgenstrahlung ausgesandt. Die Photonen mit der Energie $E=h\nu$ können durch einen inneren Photoeffekt bzw. Comptoneffekt ihre Energie bzw. einen Teil ihrer Energie an Elektronen in einer höheren Schale abgeben. Diese Elektronen verlassen als „Auger"-Elektronen das Atom. Die entstandene Lücke wird durch ein Elektron aus einer höheren Schale besetzt; dabei wird ein Photon ausgesandt. Diese Emission von Photonen bezeichnet man als innere Fluoreszenz. Das Photon kann wiederum durch einen Photoeffekt ein „Auger"-Elektron freimachen usw. Das Verhältnis der Anzahl der „Auger"-Elektronen zu der Anzahl der Photonen ist abhängig von der Ordnungszahl. Als Fluoreszenzausbeute ω_K der K-Schale bezeichnet man die

Anzahl der K-Röntgen-Quanten, die pro Elektronenlücke der K-Schale emittiert werden, und als „Auger"-Ausbeute die Differenz $1 - \omega_K$ (vgl. Abschnitt 7.1.2.). Fluoreszenzausbeute und „Auger"-Ausbeute sind als Funktion der Ordnungszahl in Abb. (9–8) aufgezeichnet. Das Ergebnis des „Auger"-Effekts ist stets eine Ionisierung des betreffenden „heißen" Atoms. Zum Beispiel findet man als Folge der isomeren Umwandlung von Xe–131 m Ionen, die im Mittel eine 8,5-fache positive Ladung tragen.

9.4. Gase und Flüssigkeiten

Sowohl in Gasen als auch in Flüssigkeiten sind die Moleküle frei beweglich. In Gasen ist der Abstand zu den Nachbarmolekülen verhältnismäßig groß (sofern der Druck nicht zu hoch ist), so daß wir nur die Bindungskräfte innerhalb des Moleküls berücksichtigen müssen. In Abb. (9–9) ist schematisch ein Molekül dargestellt, das aus dem von

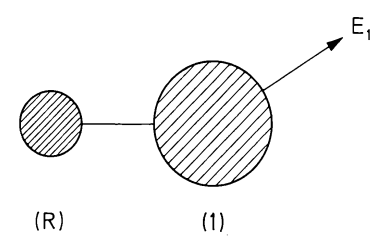


Abb. (9–9) Beanspruchung der Bindung zwischen einem Rückstoßatom (1) und einem Rest (R).

der Kernreaktion betroffenen Atom 1 und dem Rest R besteht. Die Wirkung des Rückstoßes auf die Bindung ist abhängig von seiner Richtung und der Trägheit des Restes R. Wir betrachten den einfacheren Fall, daß der Rückstoß nicht in Richtung auf den Rest R erfolgt, und teilen die Rückstoßenergie E_1 des Atoms 1 auf in die kinetische Energie, die das Molekül erhält, und in die Beanspruchung der Bindung E_B:

$$E_1 = E_B + \frac{m_1 + m_R}{2} v_s^2. \tag{9.36}$$

v_s ist die Geschwindigkeit des Molekülschwerpunktes. Nach dem Impulssatz ist

$$(m_1 + m_R)\, v_s = m_1\, v_1. \tag{9.37}$$

Daraus folgt

$$v_s^2 = \frac{(m_1 v_1)^2}{(m_1 + m_R)^2} = \frac{2 m_1 E_1}{(m_1 + m_R)^2} \tag{9.38}$$

und durch Einsetzen in Gl. (9.36)

$$E_1 = E_B + \frac{m_1 E_1}{m_1 + m_R} \tag{9.39}$$

bzw.

$$E_B = E_1 \left(1 - \frac{m_1}{m_1 + m_R}\right) = E_1 \frac{m_R}{m_1 + m_R}. \tag{9.40}$$

Die Beanspruchung der Bindung ist also um so größer, je größer die Masse des Restes R ist. Ein leichter Rest besitzt geringe Trägheit und fliegt eher mit dem Rückstoßatom mit.

Diese modellmäßige Behandlung läßt sich näherungsweise auch auf Flüssigkeiten übertragen. Für eine genauere Rechnung muß jedoch die Wechselwirkung des Restes R mit den Nachbarmolekülen (z. B. mit Solvatmolekülen) berücksichtigt werden, die zu einer scheinbaren Vergrößerung von m_R, d. h. zu einer größeren Trägheit des Restes führt. Das bedeutet aber eine größere Beanspruchung der Bindung, als man nach Gl. (9.40) berechnet. Im Grenzfall ist der Rest R durch Bindungskräfte so stark in der Umgebung verankert, daß $m_R \gg m_1$ wird. Dann wirkt sich die gesamte Rückstoßenergie auf die chemische Bindung aus: $E_B \approx E_1$. Dieser Grenzfall liegt näherungsweise in den meisten Festkörpern vor.

Erfolgt der Rückstoß in Richtung auf den Rest R, so kann durch unelastischen Stoß ein Teil der kinetischen Energie E_1 des Rückstoßatoms in Anregungsenergie des Atoms 1 und des Restes R (E_1^* bzw. E_R^*) umgewandelt und ein weiterer Teil in Form von kinetischer Energie an den Rest R übertragen werden, so daß nunmehr gilt

$$E_1' + E_R = E_1 - E_1^* - E_R^*. \tag{9.41}$$

(E_1' und E_R sind die kinetischen Energien des Atomes 1 bzw. des Restes R nach dem Stoß). Für die Beanspruchung der Bindung durch den Rückstoßeffekt ist es wichtig, wie groß E_1' und E_R nach dem Zusammenstoß sind.

Hinsichtlich der Anregungseffekte gelten die allgemeinen Überlegungen des vorausgehenden Abschnitts; exakte Berechnungen sind in den meisten Fällen nicht möglich.

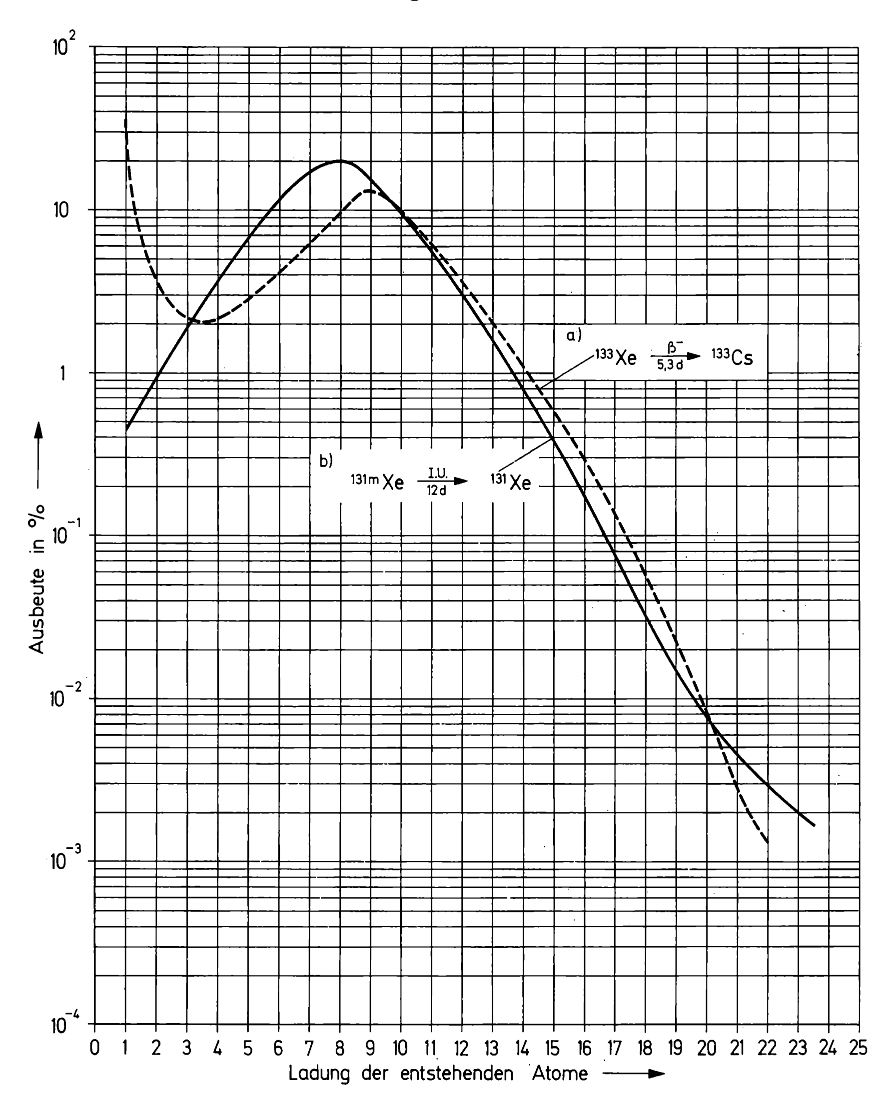


Abb. (9–10) Ladungsverteilung a) beim β^--Zerfall des Xe–133 b) bei der isomeren Umwandlung des Xe–131m. Nach A. H. SNELL, F. PLEASONTON u. T. A. CARLSON: Proceedings Series, Chemical Effects of Nuclear Transformations, Vol. I. IAEA Vienna 1961, S. 147.

Untersuchungen über die chemischen Effekte von Kernreaktionen in Gasen werden bevorzugt mit einem Massenspektrometer ausge-

führt, in dem die Bruchstücke der Moleküle sortiert werden können. Zum Beispiel findet man beim radioaktiven Zerfall von Tritium in Äthan zu etwa 80% Äthylionen:

$$C_2H_5T \xrightarrow[12{,}26\,a]{\beta^-\,(0{,}0186)} (C_2H_5{}^3He^+) \longrightarrow C_2H_5^+ + {}^3He. \quad (9.42)$$

In etwa 20% der Zerfallsprozesse entstehen andere Bruchstücke des Äthanmoleküls. Die Rückstoßenergie reicht zur Spaltung der chemischen Bindung nicht aus. Die Bildung der Molekülbruchstücke muß deshalb auf die Anregungsenergie infolge des Zerfalls zurückgeführt werden.

Die isomere Umwandlung des Br–80m in Methylbromid führt einerseits zu einem Spektrum von positiv geladenen Bromionen (Br^+ bis Br^{13+}, Maximum der Ladung bei Br^{7+}) und andererseits zu verschiedenen Bruchstücken des Methylbromids (25% CH_3Br^+, 50% CH_3^+, 4% CH_2^+, 5% CH^+, 6% C^+ und andere).

In Abb. (9–10) ist die Ladungsverteilung aufgezeichnet, die beim β^--Zerfall des Xe–133

$$^{133}Xe \xrightarrow[5{,}3\,d]{\beta^-\,(0{,}35)} {}^{133}Cs \quad (9.43)$$

und bei der isomeren Umwandlung des Xe–131 m

$$^{131m}Xe \xrightarrow[12\,d]{I.\,U.\,(0{,}164)} {}^{131}Xe \quad (9.44)$$

gefunden wird. β^--Zerfall und isomere Umwandlung führen zu einem ähnlichen Spektrum von Ionen; die Bildung dieser Ionen ist in erster Linie auf die Anregungsenergie zurückzuführen.

Interessant ist auch die Beobachtung, daß beim Zerfall des an der Seitenkette tritierten Toluols einerseits und des am Kern tritierten Toluols andererseits sehr ähnliche Spektren erhalten werden; dies deutet man durch die Annahme, daß in beiden Fällen intermediär ein angeregtes Tropyliumion entsteht:

$$C_6H_5CH_2T \longrightarrow [C_6H_5CH_2{}^3He]^+ \searrow$$

$$CH_3C_6H_4T \longrightarrow [CH_3C_6H_4{}^3He]^+ \nearrow \quad C_7H_7^+ \,(\oplus) + {}^3He$$

$$\longrightarrow C_7H_5^+ + H_2$$
$$\longrightarrow C_5H_5^+ + C_2H_2$$
$$\longrightarrow C_4H_4^+ + C_3H_3$$
$$\longrightarrow C_3H_3^+ + C_4H_4$$

Die chemischen Effekte von Kernreaktionen in Flüssigkeiten wurden insbesondere an Alkylhalogeniden eingehend untersucht. Das erste Beispiel beschrieben bereits 1934 SZILARD und CHALMERS. Sie bestrahlten Äthyljodid mit Neutronen und konnten durch Extraktion mit wässeriger schwefliger Säure etwa die Hälfte des durch die Kernreaktion

$$^{127}J\,(n,\gamma)\;^{128}J \tag{9.46}$$

gebildeten ^{128}J ($t_{1/2} = 25$ min) abtrennen. Varianten dieser Reaktionen sind (d, p)-, (n, 2n)- und (γ, n)-Reaktionen, die etwa zu dem gleichen Ergebnis führen; stets kann durch Extraktion mit Wasser ein wesentlicher Teil des radioaktiven Jods abgetrennt werden. Bei den (n, γ)-Reaktionen entsteht primär ein ^{128}J-Rückstoßatom, das infolge des Rückstoßes und der Anregung als heißes Atom das Äthyljodidmolekül, in dem es gebunden war, verläßt:

$$C_2H_5{}^{127}J\,(n,\gamma) \longrightarrow \underset{\text{Rückstoß und Anregung}}{[C_2H_5{}^{128}J]} \longrightarrow \cdot C_2H_5 + {}^{128}J\cdot \tag{9.47}$$

Die Folgereaktionen bestehen darin, daß das heiße Atom durch Zusammenstöße verschiedene Molekülbruchstücke erzeugt und dabei schrittweise seine hohe Energie verliert, bis es sich schließlich „abgekühlt" hat und im thermischen Bereich mit Molekülen oder Molekülbruchstücken reagieren kann. Die infolge der Zusammenstöße gebildeten Molekülbruchstücke sind sehr schwer nachweisbar, da sie nur in kleinen Konzentrationen vorliegen und nicht markiert sind. Die

Reaktionsprodukte, die das radioaktive ^{128}J enthalten, können dagegen mit großer Empfindlichkeit bestimmt werden. Als Folgereaktionen des weitgehend „abgekühlten" Rückstoßatoms kommen in erster Linie die folgenden Reaktionen in Betracht:

$$C_2H_5{}^{127}J + {}^{128}J\cdot \longrightarrow C_2H_5\cdot + {}^{128}J\cdot + {}^{127}J\cdot \quad (9.48)$$

$$^{127}J\cdot + {}^{128}J\cdot \longrightarrow {}^{127}J\,{}^{128}J \quad (9.49)$$

$$C_2H_5\cdot + {}^{128}J\cdot \longrightarrow C_2H_5{}^{128}J \quad (9.50)$$

$$C_2H_5{}^{127}J + {}^{128}J\cdot \longrightarrow C_2H_5{}^{128}J + {}^{127}J\cdot \quad (9.51)$$

Andere mögliche Folgereaktionen sind weniger wahrscheinlich, z. B.

$$C_2H_5{}^{127}J + {}^{128}J\cdot \longrightarrow CH_2{}^{128}JCH_2{}^{127}J + H\cdot \quad (9.52)$$

$$C_2H_5{}^{127}J + {}^{128}J\cdot \longrightarrow CH_3CH^{127}J^{128}J + H\cdot \quad (9.53)$$

Die Reaktion (9.49) führt zur Bildung von freiem Jod, das extrahiert werden kann, während bei den Reaktionen (9.50) und (9.51) ^{128}J-markiertes Äthyljodid entsteht. Diesen Anteil bezeichnet man als Retention (vgl. Abschn. 9.1.). Die Reaktionen (9.52) und (9.53) liefern verschiedene Substitutionsprodukte, die gaschromatographisch getrennt werden können. Als Folge einer Kernreaktion entsteht im allgemeinen eine Vielzahl von Reaktionsprodukten, die zwar identifiziert, hinsichtlich ihrer Entstehung aber nicht im einzelnen verfolgt werden können. Aussagen über die Folgereaktionen sind nur auf Grund der gefundenen Reaktionsprodukte möglich.

Die von SZILARD und CHALMERS beschriebene Reaktion mit Äthyljodid hat große praktische Bedeutung gewonnen, weil damit erstmals die Möglichkeit der Abtrennung eines durch (n, γ)-Reaktion erzeugten isotopen Radionuklids demonstriert wurde. Solche Abtrennungen isotoper Nuklide auf der Grundlage chemischer Effekte von Kernreaktionen werden deshalb als Szilard-Chalmers-Reaktionen bezeichnet. Die Besonderheit dieser Szilard-Chalmers-Reaktionen besteht darin, daß das abgetrennte Radionuklid eine sehr viel höhere spezifische Aktivität besitzt als die bestrahlte Substanz. Man nutzt deshalb diese Effekte aus zur Gewinnung von Radionukliden hoher spezifischer Aktivität (vgl. Abschn. 9.6.). In Tab. 9.3. sind weitere Beispiele für die chemischen Effekte von Kernreaktionen in organischen Halogeniden aufgeführt.

Bei der Untersuchung der Folgereaktionen, die durch heiße Atome ausgelöst werden, besitzt die Methode der Radikalfänger (Scavenger-Technik) große Bedeutung. Man setzt in diesem Falle kleine Mengen

Tabelle 9.3.
Chemische Effekte bei der Bestrahlung von organischen Halogeniden mit Neutronen

Bestrahlte Substanz	Mit H_2O extrahiert	In der org. Phase	Retention	Substitutions-produkte
CH_3J (15 °C)	43%	57%	46%	11% als CH_2J_2
CH_3J (–195 °C)	44%	49%*)	45%	11% als CH_2J_2
CH_2Br_2	43%	64%*)	43%	14% als $CHBr_3$
$CHBr_3$	34%	69%*)	47%	19% als CBr_4
C_6H_5Cl	50%	50%	35%	15% als $C_6H_4Cl_2$

*) Abweichung von 100% in der Summe durch Meßfehler bedingt.

Werte aus:
E. GLÜCKAUF, J. FAY: J. chem. Soc. [London] **1936**, 390.

reaktionsfähiger Verbindungen zu, die bevorzugt mit den infolge der Kernreaktion freigesetzten Atomen oder Radikalen reagieren können. Die heißen Reaktionen werden durch solche Radikalfänger wenig beeinflußt, weil diese Reaktionen wegen der hohen Energie ohne Rücksicht auf die chemischen Eigenschaften der Reaktionspartner nach den Gesetzen der Statistik ablaufen. Im Bereich der thermischen Reaktionen kommt die Selektivität des Radikalfängers dagegen voll zur Geltung. Auf diese Weise kann man heiße Reaktionen und thermische

Tabelle 9.4.
Einfluß von Anilin als Radikalfänger (Scavenger) bei der Bestrahlung von C_6H_5Br

Anilinzusatz in %	Ausbeute an ^{80}Br bei der Extraktion mit 1,5 n HCl in %
0	30
0,25	45
1	63
4	76

Werte aus:
C. LU, S. SUGDEN: J. chem. Soc. [London] **1939**, 1273.

Reaktionen unterscheiden. Ein Beispiel ist die Bestrahlung von Brombenzol in Gegenwart von kleinen Zusätzen an Anilin (Tab. 9.4.). Bereits kleine Mengen an Anilin bewirken eine deutliche Erhöhung der Ausbeute an abtrennbarem radioaktivem Brom.

9.5. Festkörper

Die Besonderheiten der Festkörper im Hinblick auf die chemischen Effekte bei Kernreaktionen bestehen darin, daß die Moleküle bzw. Ionen nicht frei beweglich sind. Sie sind meistens so fest in dem Kristallgitter verankert, daß die Masse m_R des Restes, der durch chemi-

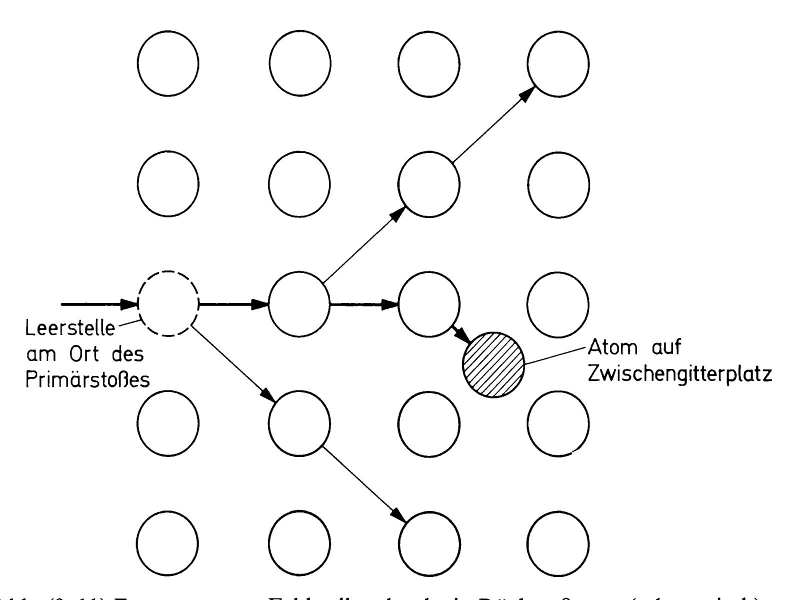


Abb. (9–11) Erzeugung von Fehlstellen durch ein Rückstoßatom (schematisch).

sche Bindungen mit dem Rückstoßatom verknüpft ist, gegenüber m_1 als unendlich groß angesehen werden kann. Dann wirkt sich nach Gl. (9.40) die gesamte Rückstoßenergie E_1 des Rückstoßatoms auf die chemische Bindung aus:

$$E_B \approx E_1. \tag{9.54}$$

Im Verlauf der Folgereaktionen erzeugt das heiße Rückstoßatom durch Zusammenstöße Fehlstellen; Ionen, Atome oder Molekül-

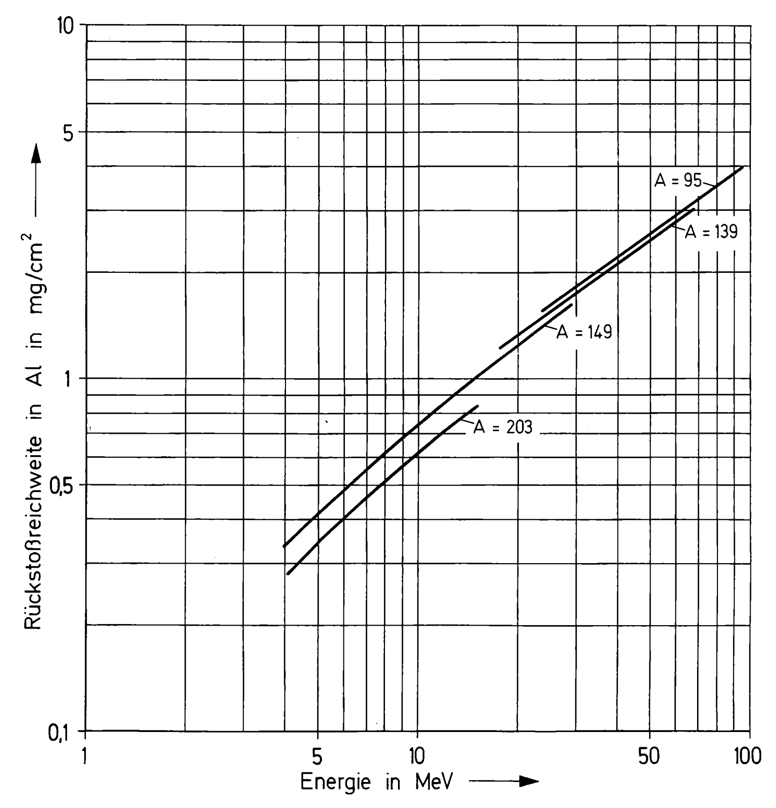


Abb. (9–12) Rückstoßreichweite in Aluminium als Funktion der Energie und Massenzahl. Nach J. Alexander u. M. F. Gazdik: Physic. Rev. **120** (1960) 874; B. G. Harvey: Annu. Rev. nuclear Sci. **10** (1960) 235.

bruchstücke werden auf Zwischengitterplätze befördert. Schließlich kommt das Rückstoßatom auf einem Gitterplatz oder einem Zwischengitterplatz zur Ruhe. Diese Folgereaktionen sind für einen einfachen Kristall (z. B. ein Metall) in Abb. (9–11) schematisch dargestellt. Die Reichweite der Rückstoßatome hängt von der Energie und der Masse der Rückstoßkerne sowie der Dichte der Substanz ab. In Abb. (9–12) ist die Reichweite in Aluminium aufgetragen. Bei (n, γ)-Reaktionen ist die Rückstoßreichweite sehr klein (etwa 5–50 Å); bei (n, α)-, (n, p)-, (d, p)- und (γ, n)-Reaktionen ist sie sehr viel größer (etwa 500 – 10000 Å). Durch die Fehlstellen werden Veränderungen im Festkörper hervorgerufen (z. B. erhöhte Leitfähigkeit, Volumenvergrößerung, erhöhte chemische Reaktionsfähigkeit). Aus diesem Grunde besitzen die Effekte von Kernreaktionen in Festkörpern großes Interesse.

Nach der Erzeugung von Fehlstellen im Festkörper sind die Folgereaktionen zunächst unterbrochen. Reaktionsfähige Atome oder Molekülbruchstücke können erst dann weiterreagieren, wenn sie infolge von Diffusionsvorgängen mit anderen reaktionsfähigen Teilchen zusammentreffen oder wenn der Festkörper aufgelöst wird. Die sekundäre Retention ist damit in hohem Maße abhängig von der Nachbehandlung des Festkörpers. So kann durch Erwärmen (erhöhte Diffusionsgeschwindigkeit) die Rekombination der Bruchstücke beschleu-

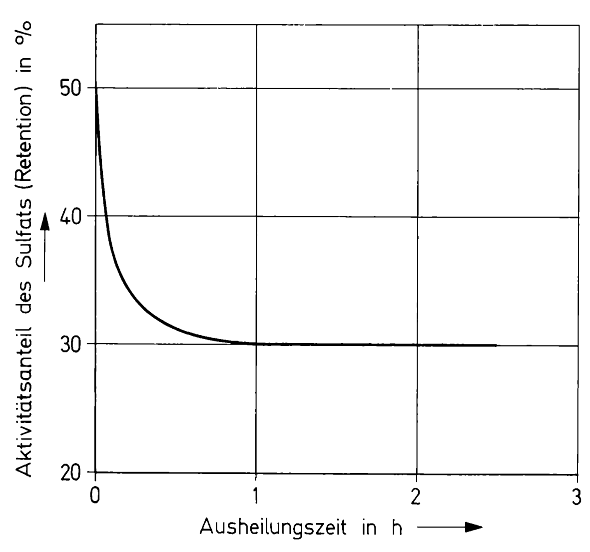


Abb. (9–13) Thermische Ausheilung von Ammoniumsulfat; Aktivitätsanteil an Sulfat (Retention) als Funktion der Ausheilungszeit (180 °C).

nigt werden; man spricht in diesem Falle von einer thermischen Ausheilung. Die Ausheilung (englisch „annealing“) kann aber auch durch Aufbewahrung bei Raumtemperatur oder durch Belichtung bzw. Bestrahlung mit γ-Quanten oder Elektronen erfolgen (Strahlungsausheilung). Sie führt meist zu einem Anstieg der Retention, manchmal auch zu einer Abnahme. In Abb. (9–13) ist als Beispiel die thermische Ausheilung von Ammoniumsulfat als Funktion der Zeit aufgetragen.

Bei der Auflösung eines bestrahlten Festkörpers können die reaktionsfähigen Atome oder Molekülbruchstücke sowohl untereinander als auch mit dem Lösungsmittel reagieren. Durch Analyse der Reaktionsprodukte stellt man stets nur die Endprodukte der Folgereaktionen fest. Aussagen über die Zwischenprodukte, die als Folge der Kernreaktionen entstehen, sind recht unsicher, solange die Zwischenprodukte nicht direkt identifiziert werden können. Da die Zwischenpro-

dukte im allgemeinen nur in sehr niedrigen Konzentrationen vorliegen, versagen auch die meisten spektroskopischen Methoden. Erfolgversprechend ist in bestimmten Fällen die Anwendung des Mößbauer-Effekts auf die Untersuchung des chemischen Zustandes der durch Kernreaktionen erzeugten Rückstoßkerne, weil sich diese Methode durch hohe Empfindlichkeit auszeichnet.

Tabelle 9.5.
Übersicht über die bei Kernreaktionen gefundenen radioaktiven Reaktionsprodukte

Bestrahlte Substanz	Kernreaktion	Reaktionsprodukte
Perchlorate	$^{37}Cl(n,\gamma)^{38}Cl$	ClO_3^-, Cl^-
Perjodate	$^{127}J(n,\gamma)^{128}J$	J^-, JO_3^-
Chlorate	$^{37}Cl(n,\gamma)^{38}Cl$	Cl^-
Bromate	$^{79}Br(n,\gamma)^{80m}Br$ $^{81}Br(n,\gamma)^{82}Br$	Br^-, Br_2
Jodate	$^{127}J(n,\gamma)^{128}J$	J^-
Sulfate	$^{34}S(n,\gamma)^{35}S$	S, SO_3^{--}, S^{--}
Phosphate	$^{31}P(n,\gamma)^{32}P$	PO_3^- u. a.
Permanganate	$^{55}Mn(n,\gamma)^{56}Mn$	$Mn^{2+}(MnO_2)$
Chromate	$^{50}Cr(n,\gamma)^{51}Cr$	Cr^{3+} (mono-, bi- und polynuklear)
Ferrocen	$^{58}Fe(n,\gamma)^{59}Fe$ $^{54}Fe(n,\gamma)^{55}Fe$	Fe^{2+}
Kupferphthalocyanin	$^{63}Cu(n,\gamma)^{64}Cu$	Cu^{2+}
Hexaminkobaltkomplexe	$^{59}Co(n,\gamma)^{60}Co$	Co^{2+} und Kobaltaminkomplexe
Arsenate	$^{75}As(n,\gamma)^{76}As$	AsO_3^{3-}
Chloride	$^{35}Cl(n,p)^{35}S$	S, S^{--}, SO_3^{--}, SO_4^{--}

Werte aus:
H. MÜLLER: Angew. Chem. **79**, 3 (1967) 132.

Besonders interessant im Hinblick auf die Möglichkeit der chemischen Trennung ist das Verhalten von solchen Atomen, die in verschiedenen Wertigkeitsstufen vorkommen können oder als stabile Komplexverbindungen vorliegen. Man findet stets nach der Bestrahlung und Aufarbeitung einen wesentlichen Teil der durch Kernreaktionen entstandenen Radionuklide in einer anderen (meist niedrigeren) Oxydationsstufe bzw. nicht mehr in Form der vorgelegten Kom-

plexverbindung. Tab. 9.5. gibt eine Übersicht über einige derartige Reaktionen.

Zum Verständnis der chemischen Effekte von Kernreaktionen in festen Körpern sind Modellvorstellungen entwickelt worden. Das älteste Modell stammt von LIBBY (1947) und wird als Billardkugel-Modell bezeichnet. Dabei werden elastische Zusammenstöße des Rückstoßatoms mit den Atomen bzw. Molekülen der Umgebung angenommen. Die maximale Energie wird bei einem zentralen Stoß übertragen; sie beträgt:

$$E_2 = 4\,E_1 \frac{m_1 \cdot m_2}{(m_1 + m_2)^2}. \tag{9.55}$$

(E_1 ist die Energie des Rückstoßkerns; m_1 und m_2 sind die Massen der Stoßpartner). Im Mittel wird etwa die Hälfte dieser Energie abgegeben. Wenn die angestoßenen Atome genügend hohe Energiebeträge E_2 erhalten, wird die Bindung in dem betreffenden Molekül gesprengt. Das Rückstoßatom, das durch die Zusammenstöße schrittweise seine Energie verliert, kann sich nach dem letzten Zusammenstoß aus dem Bereich der Reaktionsprodukte („Reaktionskäfig“) entfernen, wenn es noch genügend hohe Energie besitzt; dann entsteht ein freies Rückstoßatom. Im anderen Falle bleibt das Rückstoßatom im Bereich der Reaktionsprodukte und kann zum Ausgangsprodukt zurückreagieren (sekundäre Retention). Das Billardkugel-Modell gibt auf diese Weise zwar eine qualitative Deutung der Retention; die quantitativen Ergebnisse stehen aber mit diesem Modell nicht im Einklang. Außerdem werden die Substitutionsreaktionen in organischen Verbindungen nicht erklärt.

Neuere Modelle sind das Modell der heißen Zone (HARBOTTLE 1958) und das Fehlordnungsmodell. Bei dem Modell der heißen Zone („hot spot“) wird angenommen, daß die Energie des Rückstoßatoms sich durch eine Folge von Zusammenstößen verhältnismäßig rasch auf die Nachbaratome verteilt, so daß kurzfristig (etwa 10^{-11} s) ein Bereich von etwa 1000 Atomen über den Schmelzpunkt erhitzt wird (heiße Zone). Während dieser Zeit finden chemische Reaktionen statt (z. B. Austausch- oder Substitutionsreaktionen). Die heiße Zone kühlt sich sehr rasch wieder ab und enthält deshalb eine größere Anzahl von Fehlstellen. Diese können durch Erwärmen ausgeheilt werden. Das Fehlordnungsmodell (MÜLLER 1965) besitzt speziell für Ionenkristalle Bedeutung und lehnt sich an die Modellbetrachtungen von VINE-

YARD (1960) an (vgl. Abb. 9–11)). Nach diesem Modell kommt es nicht zur Ausbildung einer heißen Zone, sondern lediglich zur Bildung von Fehlstellen in unmittelbarer Umgebung des Rückstoßatoms. Grundlage für die Entwicklung dieses Modells waren Untersuchungen mit Mischkristallen.

9.6. Szilard-Chalmers-Reaktionen

Das wesentliche Merkmal einer Szilard-Chalmers-Reaktion haben wir bereits in Abschnitt 9.4. besprochen. Es besteht darin, daß nach einer Kernreaktion infolge der dabei auftretenden chemischen Effekte eine Abtrennung der isotopen Produktkerne erfolgen kann. Im Target wird eine bestimmte chemische Verbindung vorgelegt. Infolge der chemischen Effekte ändert sich der Oxydations- bzw. Bindungszustand des Produktes, das durch Fällung, Extraktion, Ionenaustausch oder andere Verfahren isoliert werden kann. Der Produktkern liegt oft in einer anderen chemischen Form hoher spezifischer Aktivität vor. Diese hängt in erster Linie davon ab, in welchem Umfange durch die Bestrahlung Zersetzungsreaktionen ausgelöst werden, die ebenfalls zu einer Änderung des Oxydations- bzw. Bindungszustandes des betreffenden Atoms führen. Die Möglichkeit der Abtrennung isotoper Produktkerne hoher spezifischer Aktivität wird in der Praxis vielfach ausgenutzt, und zwar vorzugsweise bei (n, γ)-Reaktionen, aber auch bei (γ, n)-, $(n, 2n)$- und (d, p)-Reaktionen. Wenn das Radionuklid nach der Abtrennung frei von inaktiven Isotopen vorliegt, spricht man von einer „trägerfreien“ Substanz.

Szilard-Chalmers-Reaktionen lassen sich verhältnismäßig einfach mit solchen Elementen ausführen, die in verschiedenen beständigen Oxydationsstufen existieren oder in Form substitutionsinerter Komplexverbindungen erhalten werden können. Diese Bedingungen sind bei einer großen Zahl der Elemente erfüllbar. Wichtig ist, daß zwischen den verschiedenen Oxydationsstufen bzw. in der Komplexverbindung während der Bestrahlung und der Trennung keine Austauschreaktionen stattfinden; denn durch solche Austauschreaktionen würde eine Rückvermischung der Isotope eintreten. Aus diesem Grunde sind substitutionslabile Komplexverbindungen für Szilard-Chalmers-Reaktionen ungeeignet.

Eine Szilard-Chalmers-Reaktion kann durch zwei Größen charakterisiert werden.

1. Anreicherungsfaktor: Dieser ist das Verhältnis der spezifischen Aktivität des Radionuklids nach der Trennung zu seiner mittleren spezifischen Aktivität in dem gesamten System vor der Trennung.
2. Ausbeute: Diese ist gegeben durch das Verhältnis der Aktivität in der abgetrennten Fraktion zur Gesamtaktivität des betreffenden Radionuklids.

Bei vielen Szilard-Chalmers-Reaktionen werden Anreicherungsfaktoren von der Größenordnung 1 000 oder höher erreicht. Die Ausbeute liegt in den praktisch interessanten Fällen meistens bei 50 bis 100%. Sie ist um so höher, je geringer die Retention und die Bildung von Nebenprodukten sind.

Beispiele für Szilard-Chalmers-Reaktionen sind in Tab. 9.6. zusammengestellt. Trägerfreie radioaktive Halogene können durch Bestrahlung von Alkyl- oder Arylhalogeniden mit Neutronen und Extraktion des gebildeten freien Halogens gewonnen werden. Ein wichtiges Beispiel dafür ist die von SZILARD und CHALMERS 1934 beschriebene Abtrennung von ^{128}J aus Äthyljodid nach einer (n, γ)-Reaktion (vgl. Abschn. 9.4.). Außerdem können die radioaktiven Halogene auch aus anorganischen Verbindungen abgetrennt werden, z. B. nach Bestrahlung der höheren Oxydationsstufen, wie Chlorate, Jodate, mit Neutronen. Wenn Fällungsreaktionen benutzt werden, ist der Zusatz eines „Trägers“ erforderlich, weil die extrem kleinen Mengen an Radionukliden sonst nicht ausgefällt werden können. Bei den Chalkogenen bietet sich ebenfalls die Ausnutzung der Änderung der Oxydationsstufe an. So bildet sich bei der Bestrahlung von Tellurat mit Neutronen radioaktives Tellurit, das mit Schwefeldioxid sehr viel rascher reduziert wird als Tellurat. Änderungen in der Oxydationsstufe treten ferner bei der Bestrahlung von Phosphaten, Arsenaten und Antimonaten mit Neutronen auf. Aber auch andere Bindungen werden gespalten; zum Beispiel liegt der radioaktive Phosphor nach der Bestrahlung von Aryl- oder Alkylphosphaten in größerem Umfange in Form von Phosphorsäure vor, die extrahiert werden kann. In einfacher Weise lassen sich auch Szilard-Chalmers-Reaktionen mit den Übergangselementen durchführen. In Permanganaten und ähnlichen Verbindungen ändert sich die Oxydationsstufe; so liegt das radioaktive Mangan nach der Bestrahlung mit Neutronen und Auflösung der Kristalle bevorzugt als Mangan(IV) vor. Vielfältige Szilard-Chalmers-Reaktionen sind mit Komplexverbindungen möglich. Zum Beispiel kann Fe–59 höherer spezifischer Aktivität durch Bestrahlung von Hexacyanoferraten oder Ferrocen mit Neutronen gewonnen werden; in

Tabelle 9.6.
Übersicht über Szilard-Chalmers-Reaktionen

Bestrahlte Substanz	Radionuklid	Retention in %
Li_2CrO_4	^{51}Cr	66
$Li_2Cr_2O_7$		54,5
Na_2CrO_4		73,6
$Na_2Cr_2O_7$		79,9
K_2CrO_4		60,8
$K_2Cr_2O_7$		89,9
$K_2Cr_3O_{10}$		69
$(NH_4)_2CrO_4$		17,5
$(NH_4)_2Cr_2O_7$		31,9
$MgCrO_4$		55,3
$ZnCrO_4$		34,6
$LiMnO_4$	^{56}Mn	8,8
$NaMnO_4$		9,1
$KMnO_4$		22,5
$AgMnO_4$		8,0
$Ca(MnO_4)_2$		6,0
$Ba(MnO_4)_2$		12,8
$LiJO_3$	^{128}J	66
$NaJO_3$		67
KJO_3		67
HJO_3		60
NH_4JO_3		22
$NaBrO_3$	^{82}Br	10
$KBrO_3$		9
$RbBrO_3$		12
$CsBrO_3$		10
$NaClO_3$	^{38}Cl	1,5
$NaClO_3$	^{34}Cl	9
$Na_4P_2O_7$	^{32}P	58
Na_2HPO_4		45
Na_3PO_4		50
H_3AsO_4	^{76}As	75 – 90
Na_2HAsO_4		60
Na_3AsO_3		90

Nach G. HARBOTTLE, N. SUTIN, in: Advances in Inorganic Chemistry and Radiochemistry, Bd. 1. Hrsg. H. J. EMELÉUS u. A. G. SHARPE. Academic Press, New York 1959, S. 273.

beiden Fällen entstehen Eisenionen, die nicht komplex gebunden sind. Hinsichtlich substitutionsinerter Komplexverbindungen für Szilard-Chalmers-Reaktionen besteht bei den Übergangselementen eine verhältnismäßig große Auswahl, nicht aber bei den anderen Metallen. So kann man für die Gewinnung von Kupfer höherer spezifischer Aktivität das Kupfer-salicylaldehyd-o-phenylendiamin oder das Kupferphthalocyanin verwenden, während beim Silber die Herstellung ähnlicher geeigneter Komplexverbindungen erhebliche Schwierigkeiten bereitet; Szilard-Chalmers-Reaktionen für Alkali- und Erdalkalimetalle sind noch nicht beschrieben.

Besondere Bedeutung besitzen die Szilard-Chalmers-Reaktionen für die Abtrennung von Kernisomeren; denn die Ausnutzung der chemischen Effekte, die bei der isomeren Umwandlung auftreten (vgl. Abschn. 9.3.), ist die einzige Möglichkeit zur Trennung und damit auch die Voraussetzung für die getrennte Untersuchung isomerer Kerne.

9.7. Rückstoßmarkierung und Selbstmarkierung

Die chemischen Effekte, die bei Kernreaktionen auftreten, führen nicht nur zur Sprengung bestehender Bindungen, sondern es können auch neue Bindungen entstehen. Dies ist für präparative Aufgaben wichtig, insbesondere für die Herstellung von markierten Verbindungen. Unter markierten Verbindungen versteht man solche, in denen bestimmte Atome durch isotope radioaktive oder stabile Atome substituiert sind (vgl. Abschn. 13.6.).

Bei einer Szilard-Chalmers-Reaktion interessiert der Vorgang, daß ein Radionuklid aus einem gegebenen Molekül oder Bindungszustand herausfliegt. Bei der Rückstoßmarkierung interessiert man sich dafür, daß ein Rückstoßatom in ein gegebenes Molekül eintritt. Somit sind bei der Rückstoßmarkierung im allgemeinen zwei Komponenten erforderlich: eine Komponente, in der das Rückstoßatom durch Kernreaktion erzeugt wird, und eine zweite Komponente, in die das Rückstoßatom eintreten soll. Beide Komponenten können auch identisch sein.

Über die erste Rückstoßmarkierung berichtete Reid (1934): Er bestrahlte Äthyljodid in Gegenwart von Pentan mit Neutronen und fand Amyljodid. Nach den Ausführungen in Abschnitt 9.4. ist es verständlich, daß die heißen ^{128}J-Atome, die bei der (n, γ)-Reaktion aus ^{127}J entstehen, auch an Pentan Substitutionsreaktionen auslösen können.

Für die organische Chemie besitzen Verbindungen, die mit C–14 oder Tritium markiert sind, besondere Bedeutung. Diese Nuklide können durch folgende Kernreaktionen erzeugt werden:

$$^{6}\mathrm{Li}(\mathrm{n},\alpha)\,^{3}\mathrm{H}; \quad \sigma = 953\ \mathrm{b}; \quad \text{Rückstoßenergie (T)} = 2{,}74\ \mathrm{MeV} \tag{9.56}$$

$$^{3}\mathrm{He}(\mathrm{n},\mathrm{p})\,^{3}\mathrm{H}; \quad \sigma = 5330\ \mathrm{b}; \quad \text{Rückstoßenergie (T)} = 0{,}190\ \mathrm{MeV} \tag{9.57}$$

$$^{14}\mathrm{N}(\mathrm{n},\mathrm{p})\,^{14}\mathrm{C}; \quad \sigma = 1{,}81\ \mathrm{b}; \quad \text{Rückstoßenergie (C–14)} = 0{,}042\ \mathrm{MeV} \tag{9.58}$$

Die nach Gl. (9.56) erzeugten Tritium-Atome besitzen eine verhältnismäßig hohe Energie und wegen ihrer niedrigen Ladung und Masse auch eine verhälnismäßig große Reichweite (in organischen Verbindungen etwa 40 μm). In diesem Falle genügt somit eine Mischung der betreffenden organischen Substanz mit einer feinkörnigen Lithiumverbindung. Reaktion (9.57) ist für Tritiummarkierungen in der Gasphase geeignet. Die nach Reaktion (9.58) erzeugten ^{14}C-Atome besitzen nur eine sehr geringe Reichweite, so daß eine homogene Mischung beider Komponenten erforderlich ist (z. B. Anilin + Benzol).

Von großem Nachteil bei dem Verfahren der Rückstoßmarkierung ist, daß stets eine Vielzahl von Reaktionsprodukten entsteht. Außerdem treten in den Verbindungen Strahlenschäden ein, die durch die Rückstoßatome sowie elastische und unelastische Streuung der einfallenden Strahlung verursacht werden. Diese Strahlenschäden sind in aromatischen organischen Verbindungen geringer als in aliphatischen. Das nach der Bestrahlung vorliegende Reaktionsgemisch muß chemisch aufgearbeitet werden. Außerdem ist die Ausbeute an dem gewünschten Produkt meistens verhältnismäßig klein. So werden beispielsweise bei der Rückstoßmarkierung mit C–14 Substitutionsprodukte gefunden, in denen ein beliebiges C–Atom durch ein ^{14}C-Atom ersetzt ist, außerdem Additionsprodukte, die ein zusätzliches C-Atom enthalten. Diese Produkte von Substitutions- und Additionsreaktionen enthalten zusammen etwa 0,1 bis 10% der entstandenen ^{14}C-Atome. Der Rest liegt in Form anderer Reaktionsprodukte (Abbauprodukte, polymere Verbindungen) vor. Bei der Rückstoßmarkierung mit Tritium findet man stets einen großen Teil des Tritiums in Form einfacher Moleküle (Wasserstoff, Methan). Die spezifische Aktivität ist durch die Strahlenschäden begrenzt. Bei der Rückstoßmarkierung mit Tritium werden spezifische Aktivitäten von etwa 1 bis 10 mCi/mg erreicht, bei der Rückstoßmarkierung mit C–14 etwa 1 bis 10 μCi/mg.

Zur Erläuterung der Selbstmarkierung möge die Beschreibung des folgenden Versuches dienen: Eine organische Verbindung wird zusammen mit Tritiumgas in einem abgeschlossenen Glasrohr etwa eine Woche aufbewahrt. Bei der Untersuchung der Substanz wird festgestellt, daß ein Teil des Tritiums von der organischen Verbindung aufgenommen wird. Die Aufarbeitung und Trennung zeigt, daß einerseits in der Ausgangsverbindung Wasserstoff durch Tritium substituiert wird und andererseits neue Tritium-markierte Verbindungen entstehen.

Die Selbstmarkierung organischer Verbindungen mit Tritium ist von WILZBACH eingehend untersucht worden und wird deshalb auch als Wilzbach-Markierung bezeichnet. Sie erfolgt zum Teil durch Reaktionen der beim Zerfall von Tritiummolekülen entstehenden Ionen $^{3}HeT^{+}$ bzw. T^{+}. Zum Teil verläuft sie in der Weise, daß unter dem Einfluß der β^{-}-Strahlung strahlenchemische Reaktionen (Anregung, Ionisation und Radikalbildung) in der organischen Verbindung stattfinden. Die Reaktionsprodukte (angeregte Moleküle, Ionen, Radikale) können mit dem Tritiumgas reagieren, wobei Tritium-markierte Verbindungen entstehen. Für die Selbstmarkierung sind wichtig: Der Verteilungszustand der zu markierenden Substanz, die Konzentration der radioaktiven Komponente und die Intensität der ionisierenden Strahlung. Die Anregung bzw. Ionisation und Radikalbildung kann durch Anwendung von β^{-}-Strahlung, durch Zusatz von inerten β^{-}-aktiven Radionukliden (z. B. Kr–85) oder durch elektrische Entladung erhöht werden. Wichtig ist, daß die angeregten bzw. ionisierten Moleküle Gelegenheit haben, sofort mit dem Radionuklid oder der radioaktiven Verbindung zu reagieren. In diesem Falle handelt es sich allerdings nicht mehr um eine Selbstmarkierung im eigentlichen Sinne, sondern um eine Markierung unter dem Einfluß ionisierender Strahlung.

Über die Selbstmarkierung mit Tritium liegen viele Untersuchungen vor (Wilzbach-Methode). Günstig sind hohe Partialdrucke an Tritium (einige Hundert Torr) und die Verwendung von gasförmigen Verbindungen oder festen Verbindungen mit großer spezifischer Oberfläche. Die Reaktionsprodukte werden meist gaschromatographisch oder durch Papier- bzw. Dünnschichtchromatographie getrennt. Die spezifischen Aktivitäten liegen im allgemeinen in der Größenordnung 10 bis 100 mCi/mg.

Sehr viel geringere praktische Bedeutung als die Markierung mit Tritium nach der Wilzbach-Methode hat die Selbstmarkierung mit

C–14, die mit $^{14}CO_2$ oder $^{14}C_2H_2$ durchgeführt werden kann. Wegen der niedrigen Aktivität des C–14 (lange Halbwertzeit) ist es günstig, zusätzliche Strahlenquellen anzuwenden (z. B. Zugabe von 1 Ci Kr–85). Die spezifischen Aktivitäten, die dabei erreicht werden, sind sehr niedrig (Größenordnung μCi/g). Da verhältnismäßig viele Nebenprodukte entstehen, sind die Ausbeuten gering. Außerdem sind sehr sorgfältige Trennungen erforderlich, um die gewünschten Verbindungen in reinem Zustand zu erhalten.

Die Selbstmarkierung gehört bereits in das Gebiet der Strahlenchemie; denn es handelt sich um chemische Reaktionen unter dem Einfluß ionisierender Strahlung. Sie wird an dieser Stelle behandelt, da sie als Folge des radioaktiven Zerfalls beobachtet wird und als praktisch wichtige Methode neben der Rückstoßmarkierung erwähnt werden muß. Auch die Rückstoßmarkierung und viele andere chemische Effekte von Kernreaktionen haben Berührungspunkte mit der Strahlenchemie, weil in diesen Fällen die angeregten Atome bzw. Moleküle, Ionen und Radikale, die infolge von Kernreaktionen entstehen, eine wichtige Rolle spielen.

Literatur zu Kapitel 9

1. J. E. Willard: Chemical Effects of Nuclear Transformations. Annu. Rev. nuclear Sci. **3** (1953) 193.
2. G. Harbottle, N. Sutin: The Szilard-Chalmers Reaction in Solids. Advances in Inorganic Chemistry and Radiochemistry, Bd. 1. Hrsg. H. J. Emeléus, A. G. Sharpe. Academic Press, New York 1959, S. 267.
3. G. Harbottle: Chemical Effects of Nuclear Transformations in Inorganic Solids. Annu. Rev. nuclear Sci. **15** (1965) 89.
4. R. Wolfgang: Hot Atom Chemistry. Annu. Rev. physic. Chem. **16** (1965) 15.
5. H. Müller: Chemische Folgen von Kernumwandlungen in Festkörpern. Angew. Chem. **79** (1967) 128.
6. B. G. Harvey: Recoil Techniques in Nuclear Reaction and Fission Studies. Annu. Rev. nuclear Sci. **10** (1960) 235.
7. H. A. C. McKay: The Szilard-Chalmers Process. In: Progress in Nuclear Physics. Bd. I. Hrsg. O. Frisch. Pergamon Press, London 1950.
8. M. L. Perlman, J. A. Miskel: Average Charge on the Daughter Atom Produced in the Decay of Ar-37 and Xe-131m. Physic. Rev. **91** (1953) 899.
9. E. H. S. Burhop: The Auger Effect. Cambridge University Press, London 1952.
10. Proceedings Series. Chemical Effects of Nuclear Transformations, 2 Bde., International Atomic Energy Agency, Wien 1961.
11. Proceedings Series. Chemical Effects of Nuclear Transformations, 2 Bde., International Atomic Energy Agency, Wien 1965.

12. M. WENZEL, P. E. SCHULZE: Tritium-Markierung, Darstellung, Messung und Anwendung nach WILZBACH ^{3}H-markierter Verbindungen. Walter de Gruyter u. Co. Berlin 1962.

Übungen zu Kapitel 9

1. Wie groß ist die Rückstoßenergie beim α-Zerfall des U–238?

2. Wie groß ist die maximale Rückstoßenergie beim β^--Zerfall des C–14? Reicht diese Energie zur Sprengung einer C–C-Bindung (Bindungsenergie 82 kcal/Mol)?

3. Wie groß ist die maximale Rückstoßenergie bei der isomeren Umwandlung des Se–79?

4. Wie groß ist die maximale Rückstoßenergie bei der Kernreaktion $^{58}Fe(n,\gamma)^{59}Fe$ mit thermischen Neutronen?

5. Welchen Wert besitzt die Rückstoßenergie bei der Kernreaktion $^{35}Cl(n,p)^{35}S$ mit thermischen Neutronen?

6. Welche kinetische Energie wird auf die Nuklide Al–26 bzw. Au–197 durch Einfang eines 14 MeV-Neutrons übertragen?

7. Man diskutiere die chemischen Effekte beim β^--Zerfall des in Form von Tellurationen vorliegenden Te–132.

8. Man diskutiere die Möglichkeiten der Gewinnung von S–35 höherer spezifischer Aktivität durch Bestrahlung verschiedener Verbindungen mit Neutronen.

9. Bei der Bestrahlung von Ammoniumsulfat mit thermischen Neutronen finden u. a. folgende Kernreaktionen statt: $^{34}S(n,\gamma)^{35}S$ und $^{14}N(n,p)^{14}C$. Man berechne die Energien der Rückstoßkerne S–35 und C–14 und diskutiere die Möglichkeiten für eine Sprengung der chemischen Bindungen im Sulfation und im Ammoniumion. Welchen Temperaturen entsprechen die Energien der Rückstoßkerne?

10. Zur Durchführung einer Szilard-Chalmers-Reaktion werden 100 g Äthyljodid 1 Stunde lang bei einem Neutronenfluß von $2 \cdot 10^4$ cm^{-2} s^{-1} bestrahlt. Das radioaktive Jod, das durch die Kernreaktion $^{127}J(n,\gamma)^{128}J$ entsteht, wird als Silberjodid ausgefällt und gemessen. Wie groß ist die Impulsrate der Silberjodidprobe, wenn die Retention 20% beträgt, die Zählausbeute der Meßanordnung 10% und die Abtrennung des Jodids 5 min nach dem Bestrahlungsende erfolgt? ($\sigma_{n,\gamma}$ (J–128) = 6,4 b)

11. Fe–59 höherer spezifischer Aktivität kann durch Bestrahlung von Kaliumhexacyanoferrat im Reaktor hergestellt werden. Die infolge des Rückstoßeffekts entstehenden freien Eisenionen können durch Hydroxidfällung abgetrennt werden; die Ausbeute beträgt 50%. Wie lange muß man 1 g Kaliumhexacyanoferrat(II) in einem Reaktor bei einem Neutronenfluß von 10^{12} cm^{-2} s^{-1} bestrahlen, um 50 μCi Fe–59 zu erhalten? ($\sigma_{n,\gamma}$ (Fe–59) = 1,1 b)

10. Strahlenchemische Reaktionen

10.1. Primäre und sekundäre Reaktionen

Die Strahlenchemie beschäftigt sich mit den chemischen Reaktionen, die durch ionisierende Strahlen ausgelöst werden. Mit der Strahlenchemie eng verwandt ist das schon längere Zeit bekannte Gebiet der Photochemie. Die Photochemie befaßt sich mit den stofflichen Veränderungen unter der Einwirkung von Licht, insbesondere im sichtbaren und im UV-Bereich; sie kann heute als ein Teilgebiet der Strahlenchemie angesehen werden. Die Lichtquanten besitzen Energien von der Größenordnung 1 eV ($\lambda \approx$ 12400 Å) bis 10 eV ($\lambda \approx$ 1240 Å) und können deshalb im allgemeinen höchstens eine Primärreaktion auslösen. Diese Primärreaktion besteht in einer Anregung oder Spaltung von Molekülen, z. B.

$$Br_2 \xrightarrow{h\nu} 2\,Br. \tag{10.1}$$

Die Zahl der Prozesse pro absorbiertem Lichtquant bezeichnet man als Quantenausbeute.

Im Gegensatz dazu werden durch γ-Quanten und energiereiche Elementarteilchen, wie Elektronen (β-Strahlen) und Protonen, sowie durch α-Teilchen sehr viele Primärreaktionen ausgelöst. Da sich die Energie dieser Teilchen zwischen etwa 100 eV und 10 MeV bewegt, können auch Ionisationsprozesse stattfinden; man spricht deshalb von ionisierender Strahlung. Ein γ-Quant oder ein hochenergetisches Teilchen kann je nach seiner Energie viele Tausend Atome bzw. Moleküle ionisieren oder anregen. Ionisation und Anregung sind die wichtigsten Primärreaktionen der Strahlenchemie:

$$M \rightsquigarrow M^+ + e^- \quad \text{(Ionisation)} \tag{10.2}$$

$$M \rightsquigarrow M^* \quad \text{(Anregung)} \tag{10.3}$$

Die geschlängelten Pfeile deuten an, daß die Reaktionen durch ionisierende Strahlen ausgelöst werden. Die Reaktionsprodukte häufen sich in einer „Spur“ an, deren Durchmesser etwa 20 Å beträgt. Die Länge der Spur ist abhängig von der spezifischen Ionisation. Bei hoher spezifischer Ionisation (α-Teilchen, Protonen) ist die Konzentration der Reaktionsprodukte in der Spur sehr groß.

Die Ionen M^+ und die angeregten Atome bzw. Moleküle M^* können in verschiedener Weise weiterreagieren. Diese sekundären Reaktionen können in der Gasphase näher untersucht werden. Wichtige Reaktionen der Ionen sind:

$$M^+ \longrightarrow R^+ + R\cdot \quad \text{(Dissoziation)} \quad (10.4)$$
$$M^+ + e^- \longrightarrow M^* \quad \text{(Rekombination)} \quad (10.5)$$
$$M^+ + X \longrightarrow Y^+ \quad \text{(Chem. Reaktion)} \quad (10.6)$$
$$M^+ + X \longrightarrow M + X^+ \quad \text{(Umladung)} \quad (10.7)$$
$$M^+ \longrightarrow M^{n+} + (n-1)\,e^- \quad \text{(Aussendung von Auger-Elektronen)} \quad (10.8)$$

Reaktion (10.5) ist verhältnismäßig häufig, Reaktion (10.8) selten. Auch für die angeregten Atome bzw. Moleküle ergeben sich viele Reaktionsmöglichkeiten:

$$M^* \longrightarrow M + h\nu \quad \text{(Fluoreszenz)} \quad (10.9)$$
$$M^* \longrightarrow 2\,R\cdot \quad \text{(Dissoziation in Radikale)} \quad (10.10)$$
$$M^* \longrightarrow R^+ + R^- \quad \text{(Dissoziation in Ionen)} \quad (10.11)$$
$$M^* + X \longrightarrow Y \quad \text{(Chem. Reaktion)} \quad (10.12)$$
$$M^* + X \longrightarrow M + X + E_{\text{kin.}} \quad \text{(Stoß 2. Art)} \quad (10.13)$$
$$\left.\begin{array}{l} M^* + X \longrightarrow M + X^* \quad (10.14) \\ M^* + M \longrightarrow M + M^* \quad (10.15) \end{array}\right\} \text{(Übertragung der Anregungsenergie)}$$

Bevorzugt finden die Reaktionen (10.9) und (10.10) statt, seltener die Reaktion (10.11). Reaktion (10.15) bezeichnet man auch als Excitonenwanderung, weil in diesem Falle die Anregungsenergie an gleichartige Atome bzw. Moleküle weitergegeben wird. Viele dieser sekundären Reaktionen verlaufen außerordentlich rasch (innerhalb von etwa 10^{-10} bis 10^{-7} s), so daß zu ihrer Untersuchung Spezialmethoden erforderlich sind. Die Reaktionsprodukte können zum Teil im Massenspektrometer nachgewiesen werden.

In Flüssigkeiten ist die Rekombination der Ionen durch die größere Ionisationsdichte begünstigt; deshalb spielen die primär erzeugten oder durch Rekombination nach Gl. (10.5) gebildeten angeregten Atome bzw. Moleküle in Flüssigkeiten eine sehr viel größere Rolle als in Gasen.

10.2. Strahlenquellen

Als Strahlenquellen kommen Radionuklide, Beschleuniger und Kernreaktoren in Frage. In der Medizin wurde früher häufig der α-Strahler Ra-226 verwendet. Er spielt in der Strahlenchemie kaum mehr eine Rolle. Dagegen haben die γ-Strahler Co-60 und Cs-137 sowohl in der Strahlenchemie als auch in der Medizin große Bedeutung als Strahlenquellen. Co-60 wird durch Bestrahlung von Kobaltmetall in Kernreaktoren durch (n, γ)-Reaktionen erzeugt; seine Halbwertzeit beträgt 5,26 a, die Energie der γ-Strahlung 1,17 und 1,33 MeV. Kleinere Strahlenquellen enthalten etwa 100 Ci Co-60, große Bestrahlungsanlagen bis zu etwa 10^5 Ci. Das Kobalt wird in großen Bleibehältern, Betonzellen oder in großen Wassertanks untergebracht. In ähnlicher Weise wird Cs-137 verwendet, das aus Spaltprodukten gewonnen wird und eine größere Halbwertzeit besitzt ($t_{1/2} = 30$ a); von Nachteil ist für viele Zwecke die geringe Energie der γ-Strahlung (0,662 MeV), die von dem Tochternuklid ^{137m}Ba ($t_{1/2} = 2{,}6$ min) ausgesandt wird.

Sehr häufig verwendet werden Elektronenbeschleuniger, z. B. van de Graaff-Generatoren, die Elektronen mit einer Energie von etwa 1 bis 3 MeV liefern. Gepulste Elektronenbeschleuniger, z. B. Linearbeschleuniger, die innerhalb von 1 μs oder einiger ns einen Impuls hoher Stromstärke mit einer Energie von 1 bis 100 MeV liefern, sind für die Pulsradiolyse von großer Bedeutung. Bei dieser Methode werden die durch den Elektronenimpuls erzeugten solvatisierten Elektronen oder kurzlebigen Radikale durch spektroskopische Verfahren erfaßt; die der Konzentration proportionale Absorption bei einer bestimmten Wellenlänge wird als elektrisches Signal weitergeleitet und auf dem Bildschirm eines Kathodenstrahloszillographen registriert. Gleichzeitig kann man die Änderung der elektrischen Leitfähigkeit verfolgen. Auch andere Beschleuniger sowie Röntgenröhren können für strahlenchemische Untersuchungen eingesetzt werden.

In Kernreaktoren sind die Substanzen im allgemeinen sowohl der intensiven γ-Strahlung als auch dem Neutronenfluß ausgesetzt. Infol-

gedessen überlagern sich die durch die γ-Strahlen ausgelösten strahlenchemischen Reaktionen und die chemischen Effekte der Kernreaktionen, die durch die Einwirkung der Neutronen stattfinden. Die energiereichen Kerne, die durch elastische und unelastische Zusammenstöße sowie durch (n, γ)-Reaktionen und Kernspaltung entstehen, führen ebenfalls zu Ionisierungsvorgängen und lösen dadurch, ähnlich wie α-Teilchen, strahlenchemische Reaktionen aus. Die Wechselwirkung dieser energiereichen Kerne („Rückstoßkerne") mit Materie ist sehr groß, die spezifische Ionisation infolgedessen sehr hoch und die Reichweite gering.

Für technische Zwecke wichtige Strahlenquellen sind die abgebrannten Brennstoffelemente, die infolge ihres hohen Gehaltes an Spaltprodukten γ-Strahlen großer Intensität aussenden. Sie können nach der Entnahme aus einem Kernreaktor für die Dauer von mehreren Monaten als Strahlenquellen dienen und zu diesem Zweck in großen Wassertanks gelagert werden. In dieser Zeit klingt ihre Aktivität sehr stark ab, so daß sie anschließend der Wiederaufarbeitung zugeführt werden können.

10.3. Grundbegriffe der Strahlenchemie

Eine wichtige Größe ist die Strahlendosis D. Dies ist eine Energiedosis, die angibt, welche Energie pro Mengeneinheit der betreffenden Substanz absorbiert wird. Die Einheit dieser Energiedosis ist 1 rad (Abkürzung von „radiation absorbed dose"):

$$1 \text{ rad} = 100 \text{ erg absorbierte Energie pro g.} \qquad (10.16)$$

Im Strahlenschutz und in der Medizin, die bereits seit langer Zeit ionisierende Strahlen für therapeutische Zwecke einsetzt, ist eine andere Einheit der Strahlendosis üblich: 1 Röntgen, abgekürzt 1 r. Dies ist diejenige Strahlendosis an Röntgen- oder γ-Strahlung, die in 1 cm^3 Luft unter Normalbedingungen Ionen und Elektronen mit einer Ladung von je 1 elektrostatischen Einheit (ese) erzeugt. Da 1 ese = $= 2{,}082 \cdot 10^9$ Elementarladungen, und zur Erzeugung eines Ionenpaares (Ion + Elektron) in Luft 34 eV erforderlich sind, entspricht die Ionendosis 1 r einer Energieabsorption von

$$\frac{2{,}082 \cdot 10^9 \cdot 34 \cdot 1{,}602 \cdot 10^{-12}}{0{,}001\,293} = 87{,}7 \text{ erg/g Luft.}$$

0,001293 ist die Dichte der Luft und $1{,}602 \cdot 10^{-12}$ der Umrechnungsfaktor von eV in erg. Die Ionendosis 1 r ist im Gegensatz zur Energiedosis 1 rad von den Eigenschaften der Substanz abhängig.

Die Dosisleistung DL ist die Dosis pro Zeiteinheit,

$$DL = \frac{\mathrm{d}D}{\mathrm{d}t}\left[\frac{\mathrm{rad}}{\mathrm{h}}\right]. \tag{10.17}$$

Bei einer punktförmigen Strahlenquelle ist die Dosisleistung proportional der Intensität der Strahlung bzw. der Aktivität A des Radionuklids, das die Strahlen aussendet, und umgekehrt proportional dem Quadrat des Abstandes R von der Strahlenquelle:

$$DL = k\frac{A}{R^2}; \tag{10.18}$$

k wird als Dosisleistungskonstante bezeichnet. Sie hängt für γ-Strahlen von der Energie der Strahlung, für β-Strahlen außerdem vom Abstand R ab. Für eine ^{60}Co-Strahlenquelle ist $k = 1{,}2\,\frac{\mathrm{rad\,m^2}}{\mathrm{Ci\,h}}$.

Zur Charakterisierung von strahlenchemischen Reaktionen dient der G-Wert. Dieser gibt die Zahl der umgesetzten oder gebildeten Moleküle pro 100 eV absorbierter Energie an. So bedeuten $G(-H_2O) = 11$: pro 100 eV absorbierter Energie werden 11 Moleküle Wasser zersetzt, $G(H_2) = 3$: pro 100 eV absorbierter Energie werden 3 Moleküle Wasserstoff gebildet. Die strahlenchemische Zersetzung von Stoffen bezeichnet man als Radiolyse.

Für gasförmige Stoffe kann auch die absorbierte Energie pro Ionenpaar bestimmt werden (vgl. Tab. 10.1.). Da diese Energie ungefähr doppelt so groß ist wie die Ionisierungsenergie, folgt, daß etwa die Hälfte der absorbierten Energie zur Erzeugung angeregter Moleküle oder Radikale verbraucht wird.

Die Konzentration der Reaktionsprodukte in einer Spur ist proportional dem Energieverlust pro Wegeinheit. Dieser wird als LET-Wert („linear energy transfer“) bezeichnet (vgl. auch Bremsvermögen, Abschn. 6.2.1.):

$$\mathrm{LET} = -\frac{\mathrm{d}E}{\mathrm{d}x}. \tag{10.19}$$

Tabelle 10.1.
Energieverbrauch W bei der Bildung eines Ionenpaares

Gas	W in eV/Ionenpaar für α-Teilchen	für Elektronen	Ionisierungsenergie in eV
He	44,4	41,4	24,6
Ne	36,8	36,0	21,6
Ar	26,4	26,1	15,8
Kr	24,1	24,5	14,0
Xe	21,9	22,1	12,1
H_2	36,7	36,3	15,4
N_2	36,5	34,7	15,6
O_2	32,4	31,1	12,1
CO_2	34,4	32,8	13,8
CH_4	29,3	27,1	13,0
C_2H_6	26,6	24,5	11,7
C_2H_4	28,0	26,1	10,5
C_2H_2	27,5	25,7	11,4
Luft	35,1	34,0	—

So beträgt der LET-Wert in Wasser für 1 MeV-Elektronen nur 0,02 eV/Å, für 1 MeV-α-Teilchen dagegen 19 eV/Å; d. h., die Konzentration der Reaktionsprodukte in der Spur ist bei den α-Teilchen um etwa drei Größenordnungen höher als bei den Elektronen. Die LET-Werte sind von der Art der Substanz und von der Energie der Strahlen abhängig.

Zur Bestimmung einer Dosis können physikalische und chemische Verfahren herangezogen werden. Eine direkte und verhältnismäßig genaue Methode ist die Bestimmung der Energieabsorption in einem Kalorimeter; sie ist recht aufwendig und wird zur Eichung anderer Verfahren benutzt. Eine weitere Methode ist die Messung der Ionisation in einem bekannten Volumen Luft mit Hilfe einer Ionisationskammer. Da zur Erzeugung eines Ionenpaares in Luft 34 eV erforderlich sind, kann die Energieabsorption berechnet werden. Die absorbierte Dosis läßt sich auch aus der Aktivität des Radionuklids berechnen, wenn der Absorptionskoeffizient für die Strahlung genau bekannt ist. Bei chemischen Dosimetern wird die Dosis aus dem Umsatz bestimmt. Wichtig ist, daß der G-Wert der Reaktion bekannt und möglichst unabhängig von der Dosisleistung und der Gesamtdosis ist.

10.4. Reaktionen in Gasen

Bei der Einwirkung ionisierender Strahlen auf Luft entstehen Stickoxide. Die dabei ablaufenden Reaktionen wurden von HARTECK näher untersucht (vgl. Tab. 10.2.). Diese Reaktionen sind wichtig, wenn Kernreaktoren mit Luft gekühlt werden. Verhältnismäßig hohe Ausbeuten an Stickoxiden können durch direkte Einwirkung der bei der Kernspaltung entstehenden Rückstoßkerne bei etwa 20 Atm erreicht werden: $G(NO_2) = 5$, $G(N_2O) = 3$. Kohlendioxid wird häufig als Kühlgas für Kernreaktoren verwendet; deshalb sind die strahlenchemischen Reaktionen des Kohlendioxids eingehend untersucht worden (vgl. Tab. 10.2.).

Die strahlenchemische Zersetzung von Wasserdampf hängt sehr stark von Beimengungen ab. Primär tritt eine recht lebhafte Zersetzung ein:

$$H_2O \rightsquigarrow \cdot H + \cdot OH; \qquad G(-H_2O) = 11{,}7. \qquad (10.20)$$

Diese kann durch die Bildung von HD in H_2O/D_2-Gemischen nachgewiesen werden:

$$\cdot H + D_2 \longrightarrow HD + \cdot D. \qquad (10.21)$$

Die Rekombination der ·H- und ·OH-Radikale erfolgt in Abwesenheit von Verunreinigungen sehr rasch, so daß nur kleine Mengen an Wasserstoffmolekülen entstehen: $G(H_2) = 0{,}02$. In Gegenwart von Beimengungen wird die Rekombination verhindert, so daß die effektive Zersetzung des Wassers erheblich ansteigt.

In Wasserstoffgas kommt es auch zur Bildung von Ionen

$$H_2 \rightsquigarrow H_2^+ + e^-, \qquad (10.22)$$

die im Massenspektrometer nachgewiesen werden können. Die Ladung kann auf andere Atome übertragen werden, z. B. auf Kr und Xe, weil deren Ionisationspotential niedriger ist als das des Wasserstoffs:

$$H_2^+ + Xe \longrightarrow H_2 + Xe^+. \qquad (10.23)$$

Tabelle 10.2.
Strahlenchemische Reaktionen in Gasen

Gas	Prim. Zersetzungsreaktionen	Folgereaktionen	Hauptreaktionsprodukt	weitere Folgereaktionen	weitere Reaktionsprodukte
N_2/O_2-Gemisch	$N_2 \rightsquigarrow 2\,N$ $O_2 \rightsquigarrow 2\,O$	$N + O_2 \rightarrow NO + O$ $2\,NO + O_2 \rightarrow 2\,NO_2$	NO_2	$NO_2 + N \rightarrow N_2O + O$	N_2O
NO_2	$NO_2 \rightsquigarrow NO + O$ $NO_2 \rightsquigarrow N + O + O$	$O + NO_2 \rightarrow NO + O_2$ $2\,NO + O_2 \rightarrow 2\,NO_2$ $NO_2 + N \rightarrow 2\,NO$ $2\,NO + O_2 \rightarrow 2\,NO_2$	NO_2	$NO_2 + N \rightarrow N_2O + O$ $N_2O \rightarrow N_2 + O$ $NO_2 + N \rightarrow N_2 + 2\,O$ $2\,O \rightarrow O_2$	N_2O N_2 und O_2
N_2O	$N_2O \rightsquigarrow N_2 + O$ (80%) $N_2O \rightsquigarrow N + NO$ (20%)		N_2 (durch prim. Zersetzungsreaktion)	$2\,NO + O_2 \rightarrow 2\,NO_2$ $O + O \rightarrow O_2$	NO_2 und O_2
CO_2	$CO_2 \rightsquigarrow CO + O$ $CO_2 \rightsquigarrow C + O + O$	$CO + C \rightarrow C_2O$ $\rightarrow C_2O + CO \rightarrow C_3O_2$ $C_3O_2 + O \rightarrow CO_2 + C_2O$	CO_2	Reaktionen von C_2O und C_3O_2	O_2 und polymere Produkte

10.5. Reaktionen in wässerigen Lösungen

Bereits 1901 wurde in Lösungen von Radiumsalzen eine Gasentwicklung festgestellt (CURIE, SODDY). Dies war eine der ersten Beobachtungen einer strahlenchemischen Reaktion; als Reaktionsprodukte wurden H_2, O_2 und H_2O_2 gefunden.

Radiolyse des Wassers tritt immer ein, wenn radioaktive Stoffe gelöst sind oder ionisierende Strahlen von außen einwirken. Sie spielen eine wichtige Rolle in wassergekühlten Kernreaktoren. Heute nimmt man folgende Primärreaktionen als die wichtigsten an:

$$H_2O \rightsquigarrow H_2O^+ + e^- \quad \text{(Ionisation)} \qquad (10.24)$$

$$H_2O \rightsquigarrow H_2O^* \quad \text{(Anregung)} \qquad (10.25)$$

Die primären Reaktionsprodukte können in mannigfaltiger Weise weiterreagieren. In reinem Wasser sind folgende sekundäre Reaktionen wichtig:

$$H_2O^+ + H_2O \longrightarrow H_3O^+ + \cdot OH \qquad (10.26)$$

$$2\,\cdot OH \longrightarrow H_2O_2 \qquad (10.27)$$

$$H_2O^+ + e^- \longrightarrow H_2O^* \qquad (10.28)$$

$$H_2O^* \longrightarrow \cdot H + \cdot OH \qquad (10.29)$$

$$\cdot H + \cdot H \longrightarrow H_2 \qquad (10.30)$$

$$\cdot H + \cdot OH \longrightarrow H_2O \qquad (10.31)$$

Als Reaktionsprodukte entstehen Wasserstoff und Wasserstoffperoxid; letzteres kann leicht nachgewiesen werden.

In wässerigen Lösungen kann einerseits die reduzierende Wirkung der $\cdot H$-Radikale und andererseits die oxydierende Wirkung der $\cdot OH$-Radikale zur Geltung kommen. So sind in Abwesenheit von gelöstem Sauerstoff folgende Reaktionen möglich:

$$\cdot H + Ce^{4+} \longrightarrow H^+ + Ce^{3+} \qquad (10.32)$$

$$\cdot OH + Fe^{2+} \longrightarrow OH^- + Fe^{3+} \qquad (10.33)$$

In Anwesenheit von gelöstem Sauerstoff wird außerdem das Hydroperoxyradikal $HO_2\cdot$ gebildet:

$$\cdot H + O_2 \longrightarrow HO_2\cdot. \qquad (10.34)$$

Dieses kann ebenfalls reduzierend oder oxydierend wirken:

$$HO_2\cdot \ + Ce^{4+} \longrightarrow H^+ \ + O_2 \ + Ce^{3+} \qquad (10.35)$$
$$HO_2\cdot \ + Fe^{2+} \longrightarrow HO_2^- \ + Fe^{3+} \qquad (10.36)$$
$$HO_2^- \ + H_2O \longrightarrow H_2O_2 \ + OH^- \qquad (10.37)$$

Die Oxydation des Fe^{II} zu Fe^{III} in saurer lufthaltiger Lösung (z. B. 10^{-3} m $Fe(NH_4)_2(SO_4)_2$ in 0,1 n H_2SO_4) dient häufig zur Dosimetrie (Fricke-Dosimeter). Der G-Wert des Fricke-Dosimeters ist in Abb. (10–1) als Funktion des LET-Wertes aufgezeichnet. Bei den niedrigen LET-Werten der γ- und Elektronenstrahlung ist $G(Fe^{III}) = 15{,}5 \pm 0{,}5$.

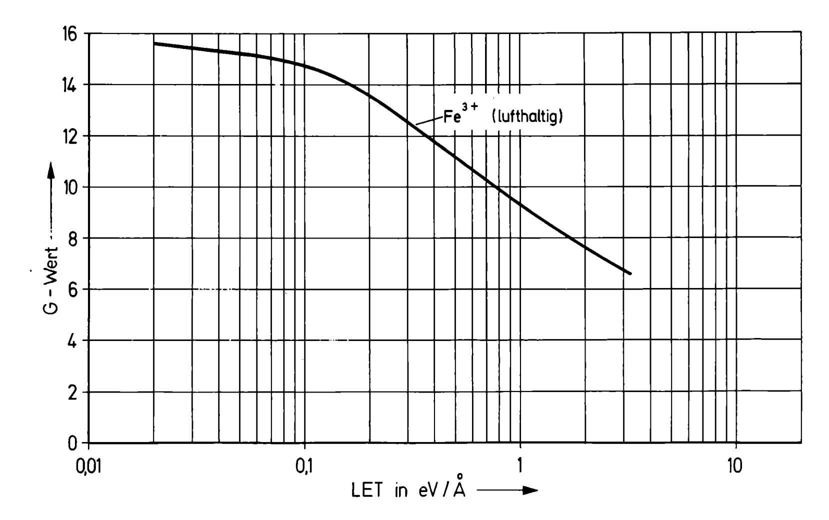


Abb. (10–1) G-Wert des Fricke-Dosimeters als Funktion des LET-Wertes. Nach A. O. ALLEN: The Radiation Chemistry of Water and Aqueous Solutions. D. van Nostrand Comp., Princeton, New Yersey, 1961.

10.6. Reaktionen in organischen Verbindungen

Zur Untersuchung der Reaktionsprodukte, die bei der Einwirkung ionisierender Strahlen auf organische Verbindungen entstehen, werden massenspektrometrische, gaschromatographische und spektroskopische Methoden benutzt. Zum Nachweis von Radikalen werden oft Radikalfänger zugesetzt, z. B. radioaktives Jod.

Tabelle 10.3.
Reaktionsprodukte bei der Radiolyse des Methans

Reaktionsprodukt	*G*-Werte		
	α-Strahlen (Rn)	Elektronen (aus Beschleuniger)	γ-Strahlen
H_2	4,8	5,7	6,4
C_2H_6	1,9	2,1	2,1
C_2H_4	0	0,05	0,13
C_3H_8	0,35	0,14	0,26
C_4H_{10}	0	0,04	0,13

Werte aus:
R. E. Honig, C. W. Sheppard: J. physic. Chem. **50** (1946) 119.
F. W. Lampe: J. Amer. chem. Soc. **70** (1957) 1055.
K. Yang, P. J. Manno: J. Amer. chem. Soc. **81** (1959) 3507.

Die bei der Radiolyse des Methans gefundenen Reaktionsprodukte sind in Tabelle 10.3. zusammengestellt. Das wichtigste Zwischenprodukt ist das Methylradikal, das wahrscheinlich nach folgender Gleichung entsteht:

$$CH_4 \rightsquigarrow CH_4^* \longrightarrow \cdot CH_3 + \cdot H. \qquad (10.38)$$

Die Radiolyse höherer gesättigter Kohlenwasserstoffe verläuft ähnlich wie die des Methans. In allen Fällen entsteht ein verhältnismäßig großer Anteil an Wasserstoff. Bei höheren Kohlenwasserstoffen tritt allerdings die Spaltung von C–C-Bindungen gegenüber der Spaltung von C–H-Bindungen mehr in den Vordergrund. In Gegenwart von Sauerstoff entstehen Ketone, Alkohole, Peroxide, Säuren und Wasser, allerdings in verhältnismäßig geringen Ausbeuten. In Gegenwart von Halogenen oder Sulfurylchlorid findet eine Halogenierung oder Sulfochlorierung statt. Da diese Reaktionen als Kettenreaktionen ablaufen, werden *G*-Werte von der Größenordnung 10^5 bis 10^6 erreicht.

Ungesättigte Kohlenwasserstoffe liefern bei der Bestrahlung geringere Mengen an Wasserstoff und größere Mengen an höhermolekularen Produkten (Polymeren). Außerdem wird eine cis-trans-Isomerisierung beobachtet. Auch aus Acetylen entstehen bei der Bestrahlung höhermolekulare Substanzen, u. a. etwa 15 bis 20% Benzol. Die strahlenchemische Polymerisation von ungesättigten Verbindungen, wie

Vinylchlorid oder Styrol, besitzt technisches Interesse, zumal sie als Kettenreaktion ablaufen kann; die Produkte sind jedoch nicht einheitlich.

Strahlenchemische Reaktionen an Halogen-Verbindungen führen meist zur Spaltung der Kohlenstoff-Halogen-Bindung, weil diese die geringste Bindungsenergie besitzt. So entsteht bei der Bestrahlung von Chloroform Chlorwasserstoff:

$$CHCl_3 \rightsquigarrow \cdot CHCl_2 + \cdot Cl \tag{10.39}$$

$$\cdot Cl + CHCl_3 \longrightarrow HCl + \cdot CCl_3 \tag{10.40}$$

$$\cdot CCl_3 + \cdot CCl_3 \longrightarrow CCl_3 - CCl_3 \tag{10.41}$$

In Gegenwart von freien Halogenen finden strahlenchemisch induzierte Austauschreaktionen statt, die zur Halogenmarkierung dienen können:

$$RJ \rightsquigarrow R\cdot + J\cdot \tag{10.42}$$

$$R\cdot + {}^{131}J_2 \longrightarrow R^{131}J + {}^{131}J\cdot \tag{10.43}$$

Bei Alkoholen, Aldehyden, Ketonen, Carbonsäuren und Äthern werden bevorzugt die der funktionellen Gruppe benachbarten Bindungen aufgespalten, z. B.

$$R-COOH \rightsquigarrow RH + CO_2 \tag{10.44}$$

Für aromatische Verbindungen ist charakteristisch, daß sie strahlenchemisch verhältnismäßig stabil sind. So ist der *G*-Wert für die Bildung von Radikalen bei n-Hexan 7,6, bei Cyclohexan 6,2, bei Benzol 0,66 und bei Toluol 2,4. Hauptprodukt bei der Bestrahlung von Benzol sind polymere Verbindungen; daneben entsteht etwas Wasserstoff und Acetylen.

In hochpolymeren Verbindungen finden nebeneinander Vernetzungsreaktionen und Abbaureaktionen statt; dabei wird auch etwas Wasserstoff abgespalten. Durch die Bestrahlung wird meistens zunächst eine Erhöhung der Festigkeit oder der Viskosität erreicht, was für technische Zwecke von Interesse ist. Bei sehr hoher Dosis tritt die Zersetzung in den Vordergrund, wobei Sauerstoff eine wichtige Rolle spielt.

10.7. Reaktionen in festen anorganischen Stoffen

In festen anorganischen Stoffen werden neben Änderungen der physikalischen Eigenschaften auch chemische Reaktionen beobachtet.

γ-Quanten und Elektronen rufen in Metallen im allgemeinen keine merklichen physikalischen Veränderungen hervor, wohl aber in Halbleitern bzw. Ionenkristallen.

Neutronen, Protonen und andere schwere Teilchen erzeugen sowohl in Metallen als auch in Halbleitern physikalische Veränderungen. Diese werden in Metallen hauptsächlich durch Zusammenstöße oder Reaktionen mit den Atomkernen hervorgerufen, in Halbleitern außerdem durch Ionisations- oder Anregungsprozesse in den Elektronenhüllen. Durch Impulsübertragung entsteht längs des Weges eine Vielzahl von Fehlstellen (Leerstellen oder Atome auf Zwischengitterplätzen). Diese können Änderungen der Leitfähigkeit, der Dichte und der optischen Eigenschaften zur Folge haben.

In Ionenkristallen gelangt ein Teil der durch die ionisierende Strahlung nach Gl. (10.2) erzeugten Elektronen in das Leitfähigkeitsband und trägt zur Leitfähigkeit bei. Auch die Defektelektronen, die durch das Herausschlagen der Elektronen entstehen, können beweglich sein. Die freien Elektronen können entweder mit den Elektronendefektstellen rekombinieren oder in Fehlstellen eingefangen werden. Ein Elektron auf einer Anionenleerstelle bildet ein F-Zentrum, ein Defektelektron auf einer Kationenleerstelle ein V-Zentrum. Diese F- und V-Zentren verursachen die Färbung bestrahlter Kristalle. Durch Erwärmen kann meist eine Ausheilung erreicht werden.

Molekülkristalle, z. B. organische feste Stoffe, und nichtkristalline feste Verbindungen nehmen in ihrem Verhalten eine Zwischenstellung ein zwischen Ionenkristallen und Flüssigkeiten. Auch bei diesen Stoffen werden infolge der Abspaltung von Elektronen eine Erhöhung der Leitfähigkeit und eine Verfärbung beobachtet.

Chemische Reaktionen können von Leptonen (γ-Quanten oder Elektronen) durch Anregungs- oder Ionisationsprozesse ausgelöst werden, von Nukleonen außerdem durch Zusammenstöße oder Reaktionen mit den Atomkernen. Die chemischen Effekte von Kernreaktionen in Festkörpern wurden bereits in Abschnitt 9.5. behandelt. Beim Aufprall von Neutronen, Protonen oder anderen schweren Teilchen auf Atomkerne werden Rückstoßatome erzeugt, die sich ähnlich verhalten wie die durch (n, γ)-Reaktionen entstehenden Rückstoßatome.

Die Bildung von ·H- und ·OH-Radikalen kann durch Bestrahlung von Eis bei tiefer Temperatur (etwa 77 °K) auf Grund der paramagnetischen Resonanz nachgewiesen werden. Bei höherer Temperatur (115 °K) verschwinden die Radikale durch Rekombination.

Wenn ein Kristall von Silbernitrat mit γ-Quanten, Elektronen oder Neutronen bestrahlt wird, so verfärbt er sich schwarz. Diese Verfärbung beruht nicht auf der Bildung von elementarem Silber, sondern auf der Erzeugung von Fehlstellen; denn beim Erwärmen der Kristalle verschwindet die Färbung wieder. Neben diesen physikalischen Veränderungen finden aber auch chemische Reaktionen statt; ein Teil des Nitrats wird in Nitrit und Sauerstoff zersetzt:

$$NO_3^- \rightsquigarrow NO_2^- + O. \qquad (10.45)$$

Durch Erwärmen kann eine Ausheilung — d. h. eine partielle Rekombination von Sauerstoff und Nitritionen — erreicht werden (vgl. Abb. (10–2)). Die chemischen Effekte von Kernreaktionen und strahlen-

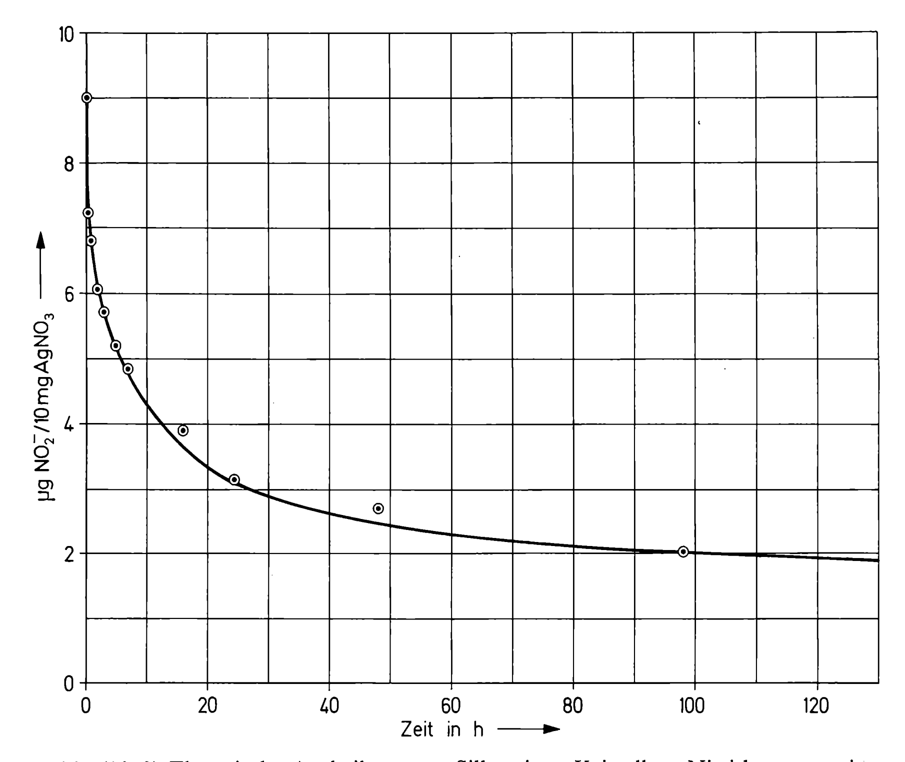


Abb. (10–2) Thermische Ausheilung von Silbernitrat-Kristallen: Nitritkonzentration als Funktion der Ausheilungszeit (170 °C).

chemische Reaktionen führen somit in Festkörpern zu ähnlichen Produkten.

Literatur zu Kapitel 10

1. J. W. T. Spinks, R. J. Woods: An Introduction to Radiation Chemistry. John Wiley and Sons, New York 1964.
2. H. Mohler: Chemische Reaktionen ionisierender Strahlen (Radiation Chemistry). Verlag H. R. Sauerländer & Co., Aarau u. Frankfurt am Main 1958.
3. A. O. Allen: The Radiation Chemistry of Water and Aqueous Solutions. D. Van Nostrand Company, London 1961.
4. A. J. Swallow: Radiation Chemistry of Organic Compounds. Pergamon Press, Oxford 1960.
5. R. O. Bolt, J. G. Carroll: Radiation Effects on Organic Materials. Academic Press, New York 1963.
6. A. Chapiro: Radiation Chemistry of Polymeric Systems. Interscience Publishers, London 1962.
7. A. Charlesby: Atomic Radiation and Polymers. Pergamon Press, Oxford 1960.
8. S. C. Lind: Radiation Chemistry of Gases. Reinhold Publ. Corp., New York 1961.
9. G. J. Dienes, G. H. Vineyard: Radiation Effects in Solids. Interscience Publishers, London 1957.
10. D. W. Billington, J. H. Crawford: Radiation Damage in Solids. Princeton University Press, Princeton 1961.
11. P. J. Dyne, D. R. Smith, J. A. Stone: Radiation Chemistry. Annu. Rev. physic. Chem. **14** (1963) 313.
12. H. A. Schwarz: Radiation Chemistry. Annu. Rev. physic. Chem. **16** (1965) 347.
13. M. Ebert, J. P. Keene, A. J. Swallow, J. H. Baxendale: Pulse Radiolysis. Academic Press, New York 1965.

Übungen zu Kapitel 10

1. Wie groß ist die Dosisleistung einer punktförmigen ^{60}Co-Strahlenquelle von 1000 Ci in 1 m Abstand?

2. 10 g Hexan werden mit einer Dosis von 10 Mrad γ-Strahlung bestrahlt. Dabei werden 0,414 mMol H_2 gebildet. Wie groß ist der G-Wert für die Bildung von Wasserstoff $G(H_2)$?

3. Mit dem Fricke-Dosimeter wurden bei einer Bestrahlungszeit von 10 min 3,2 μg Fe^{III}/ml gefunden. Wie groß ist die Dosisleistung der γ-Strahlung?

11. Kernbrennstoffe und Reaktorchemie

11.1. Energiegewinnung durch Kernspaltung

Die allgemeine Gleichung für die Kernspaltung durch Neutronen lautet

$$A + n \longrightarrow B + D + \nu n + \Delta E. \qquad (11.1)$$

Für die Energiegewinnung in Kernreaktoren sind zwei Besonderheiten der Kernspaltung von entscheidender Bedeutung:

1. Bei der Spaltung schwerer Kerne ist die Energie ΔE sehr groß.
2. Da bei der Spaltung eines schweren Kerns mehrere Neutronen frei werden ($\nu = 2$ bis 3), ist eine Kettenreaktion möglich.

Die Energie ΔE kann näherungsweise aus der Kurve für die Bindungsenergie (Abb. (1–11) entnommen werden: Die mittlere Bindungsenergie pro Nukleon beträgt für Atomkerne mit den Massenzahlen A = 230 bis 240 rund 7,5 MeV, für Atomkerne mit den Massenzahlen 80 bis 150, die als Spaltprodukte auftreten (vgl. Abb. (8–13) bzw. (8–14)) jedoch ungefähr 8,4 MeV. Die Differenz — etwa 0,9 MeV pro Nukleon — wird bei der Spaltung der schweren Kerne frei. Da ein spaltbarer Kern etwa 230 bis 240 Nukleonen enthält, beträgt die pro Kernspaltung in Freiheit gesetzte Energie etwa 200 MeV. Werte in dieser Größe erhält man auch, wenn man die Energie der Kernspaltung für bestimmte Spaltstücke berechnet. Im Mittel teilt sich die Energie der Kernspaltung folgendermaßen auf:

Kinetische Energie der Spaltstücke	167 MeV
Kinetische Energie der bei der Spaltung entstehenden Neutronen	5 MeV
Bei der Kernspaltung auftretende γ-Strahlung (momentane γ-Strahlung)	7 MeV
Energie des β-Zerfalls der Spaltstücke	5 MeV
Energie des γ-Zerfalls der Spaltstücke (verzögerte γ-Strahlung)	5 MeV
Energie der Neutrinos	11 MeV
zusammen	200 MeV

In der folgenden Reaktionsgleichung sind diese Werte angegeben (mit Ausnahme des Wertes für die Neutrinos); die Abkürzung S.P. steht für Spaltprodukte

$$\begin{array}{l} {}^{235}\mathrm{U} + {}^{1}\mathrm{n} \longrightarrow \underset{(167\,\mathrm{MeV})}{\mathrm{S.P.}} + \underset{(5\,\mathrm{MeV})}{\nu \mathrm{n}} + \underset{(7\,\mathrm{MeV})}{\gamma\,(\mathrm{momentan})} \\ \qquad\qquad\qquad \llcorner\!\!\longrightarrow \underset{(5\,\mathrm{MeV})}{\beta\text{-Strahlung}} + \underset{(5\,\mathrm{MeV})}{\gamma\,(\mathrm{verzögert})} \end{array} \tag{11.2}$$

Die Summe der kinetischen Energie der Spaltstücke und der Energie des β-Zerfalls kann kalorimetrisch bestimmt werden. Diese Energiebeträge werden in unmittelbarer Nähe des Spaltprozesses in Wärme umgesetzt. Die Energie der Neutronen und der γ-Strahlung kann nur in dem Umfang ausgenutzt werden, in dem diese Strahlen in dem betreffenden Medium absorbiert werden. Die Energie der Neutrinos geht praktisch verloren, weil diese Teilchen einen außerordentlich kleinen Wirkungsquerschnitt besitzen ($\sigma \lessapprox 10^{-20}$ b) und deshalb nicht absorbiert werden. Sieht man von der Energie der Neutrinos ab, so ist pro Spaltprozeß eine Energie von 189 MeV nutzbar. Da 1 eV einer Energie von 23 kcal/Mol entspricht, ist die nutzbare Energie bei der Spaltung von 1 g U–235

$$E = \frac{189 \cdot 10^6 \cdot 23}{235} = 1{,}85 \cdot 10^7\,\mathrm{kcal} \triangleq 2{,}15 \cdot 10^4\,\mathrm{kWh}.$$

Bei der Verbrennung von 1 g Kohlenstoff oder Kohle wird eine Energie von 8,1 kcal oder $9{,}4 \cdot 10^{-3}$ kWh frei. Somit ist die Energie, die durch Spaltung von Kernbrennstoffen gewonnen werden kann, um den Faktor $2{,}3 \cdot 10^6$ größer als die Energie, die durch Verbrennung der gleichen Menge Kohle gewonnen wird. Vergleicht man mit der Energie von Sprengstoffen, so folgt, daß die vollständige Spaltung von 1 kg U–235 ebensoviel Energie liefert wie die Explosion von 20000 t Trinitrotoluol (TNT). Diese Berechnungen sind von grundlegender Bedeutung für die Entwicklung von Kernkraftwerken und Atombomben.

Die zweite wichtige Besonderheit der Kernspaltung ist die Tatsache, daß die Zahl der Neutronen vervielfacht wird: Ein Neutron wird eingefangen und löst die Kernspaltung aus; dabei werden im Mittel 2 bis 3 Neutronen frei. Dies ermöglicht den Ablauf einer Kettenreaktion, die

schematisch in Abb. (11–1) dargestellt ist. Als Beispiel betrachten wir

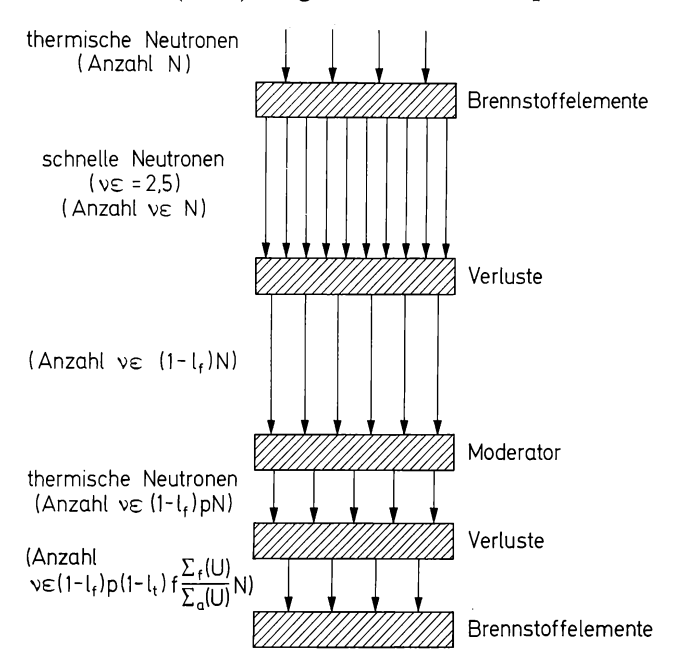


Abb. (11–1) Der Multiplikationsfaktor k für Neutronen bei einer Kettenreaktion (schematisch).

die Spaltung von Uran. Ob eine Kettenreaktion abläuft, hängt ab von der Größe des Multiplikationsfaktors k, der durch folgende Beziehung gegeben ist:

$$k = \nu\varepsilon(1 - l_f)p(1 - l_t)f\frac{\Sigma_f(U)}{\Sigma_a(U)}. \tag{11.3}$$

ν ist die Zahl der Neutronen, die bei der Spaltung des U–235 mit thermischen Neutronen entsteht (vgl. Abb. (11–1)); ε, der Faktor für die Spaltung durch schnelle Neutronen, gibt an, in welchem Umfang durch die Spaltung des U–238 die Zahl der Neutronen erhöht wird. ε bewegt sich zwischen 1,0 und 1,1. In Graphit-moderierten Natururan-Reaktoren ist $\varepsilon = 1{,}03$. Von den insgesamt $\nu\varepsilon$ schnellen Neutronen geht der Bruchteil l_f verloren. Der verbleibende Rest, der durch den Faktor $\nu\varepsilon(1 - l_f)$ gegeben ist, wird in einem Moderator abgebremst. Als Moderatoren sind solche Stoffe geeignet, die einen möglichst kleinen Einfangquerschnitt für Neutronen und eine niedrige Massenzahl besitzen; bei niedriger Massenzahl des Moderators ist der Energieverlust des Neutrons beim Zusammenstoß hoch. Geeignete Moderatoren

sind D_2O und Graphit. Während des Abbremsvorganges wird von den energiereichen Neutronen der Bruchteil $(1-p)$ im Resonanzbereich von U–238 eingefangen und löst die Kernreaktion $^{238}U(n,\gamma)^{239}U$ aus, die zur Bildung von ^{239}Np und ^{239}Pu führt. Die verbleibenden $\nu\varepsilon \cdot (1-l_f)p$ Neutronen sind thermische Neutronen; davon entweicht der Bruchteil l_t aus dem System; von dem Rest wird der Bruchteil f von Uranatomen eingefangen, der Bruchteil $(1-f)$ von anderen Stoffen. Σ_f bzw. Σ_a sind die makroskopischen Wirkungsquerschnitte (vgl. Abschnitt 8.6.). Der Bruchteil $\frac{\Sigma_f(U)}{\Sigma_a(U)}$, der von den Uranatomen eingefangenen thermischen Neutronen löst eine neue Kernspaltung aus; der Rest, der durch $\frac{\Sigma_a(U)-\Sigma_f(U)}{\Sigma_a(U)}$ gegeben ist, führt zu anderen Kernreaktionen, z. B. $^{238}U(n,\gamma)^{239}U$ oder $^{235}U(n,\gamma)^{236}U$.

$$\nu \frac{\Sigma_f(U)}{\Sigma_a(U)} = \eta \tag{11.4}$$

ist die Zahl der Spaltneutronen, bezogen auf die Zahl der im Uran absorbierten thermischen Neutronen. Für reine Nuklide ist $\Sigma_f/\Sigma_a = \sigma_f/\sigma_a$ (vgl. Abschnitt 8.6.).

In den Abbn. (11–2), (11–3) und (11–4) sind die Wirkungsquerschnitte für die Kernspaltung σ_f, das Verhältnis $\frac{\sigma_f}{\sigma_a}$ und η sowohl für U–235 als auch für U–238 als Funktion der Neutronenenergie aufgezeichnet.

Man unterscheidet folgende Möglichkeiten:

$k < 1$ — das System ist unterkritisch; d. h., die Kettenreaktion kann nicht ablaufen.

$k = 1$ — das System ist kritisch; d. h., die Kettenreaktion ist möglich.

$k > 1$ — das System ist überkritisch.

Die Neutronenverluste werden durch einen Reflektor herabgesetzt. Dieser besteht häufig aus Graphit oder Beryllium und reflektiert einen Teil der Neutronen, die den Reaktor verlassen wollen.

In einem unendlich ausgedehnten System können keine Verluste auftreten. Der Multiplikationsfaktor beträgt dann

$$k_\infty = \eta \varepsilon p f. \tag{11.5}$$

Diese Formel wird als 4-Faktoren-Formel bezeichnet und spielt für

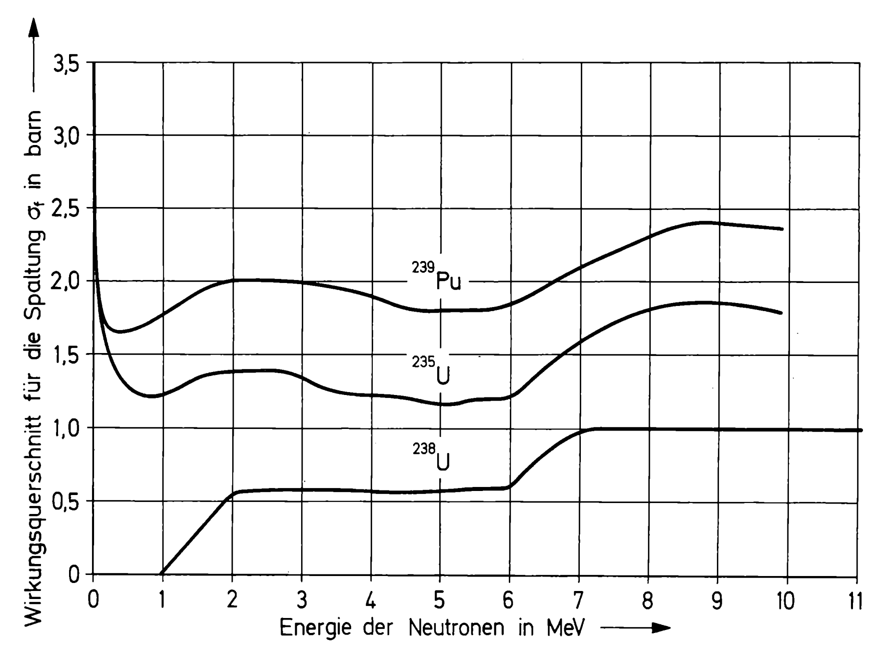


Abb. (11–2) Wirkungsquerschnitt für die Spaltung des U–235, U–238 und Pu–239 als Funktion der Energie der Neutronen. Nach D. J. HUGHES u. R. B. SCHWARTZ: Neutron Cross Sections BNL 325, Sec. Ed. July 1958.

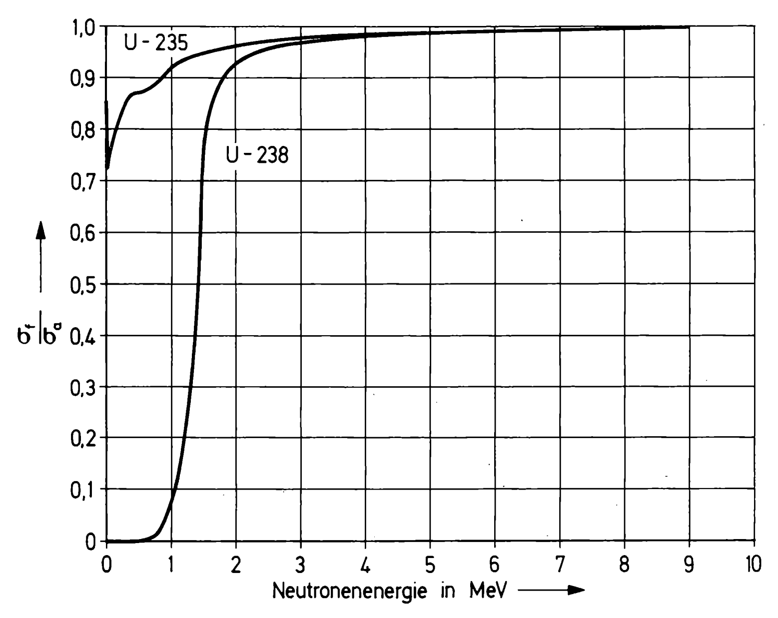


Abb. (11–3) Das Verhältnis σ_f/σ_a für U–235 und U–238 als Funktion der Energie der Neutronen. Nach J. J. SCHMIDT: Neutron Cross Sections for Fast Reactor Materials, Part II, Tables; KFK 120 (EANDC - E - 35 U) 1962.

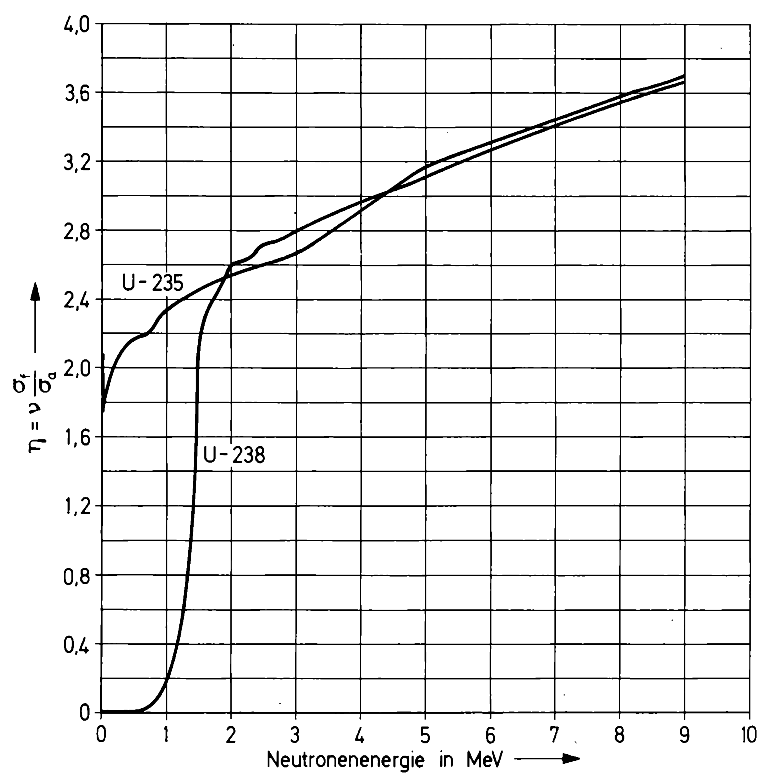


Abb. (11–4) $\eta = \nu \frac{\sigma_f}{\sigma_a}$ nach Gl. (11.4) als Funktion der Energie der Neutronen für U–235 und U–238 (Werte für ν aus J. J. SCHMIDT: Neutron Cross Sections for Fast Reactor Materials, Part III, Graphs, Kernforschungszentrum Karlsruhe KFK 120 (EANDC–E–35 U) 1962.

die Berechnung von Reaktoren eine wichtige Rolle. η hängt nur von den Eigenschaften des verwendeten Kernbrennstoffs ab, ε außerdem von seiner Form und Anordnung. p und f sind von den Eigenschaften, der Menge und Anordnung aller Stoffe abhängig, die im Reaktor zugegen sind. ε ist etwas größer als 1 (vgl. oben), p und f sind etwas kleiner als 1; für Näherungsrechnungen kann man daher für das Produkt $\varepsilon p f \approx 1$ setzen.

Die kritischen Abmessungen eines bestimmten Reaktortyps sind dann gegeben, wenn $k = 1$ ist. In der Praxis wählt man die Größe eines Reaktors jedoch so, daß eine gewisse Überschußreaktivität δ vorhanden ist: $k = 1 + \delta$. Die Überschußreaktivität wird durch ein Kontrollsystem kompensiert, wobei Kontrollstäbe aus Cadmium, Bor oder Seltenen Erden in den Reaktor eingebracht werden.

Die Neutronenverluste in einem Reaktor von endlichen Dimensionen können näherungsweise durch einen Faktor $L_S^2 + L^2$ berücksichtigt werden. L_S ist die mittlere Weglänge der Spaltneutronen, bis sie thermische Energie erreichen, und L die mittlere Weglänge der thermischen Neutronen. Für einen kugelförmigen Kernreaktor vom Radius R erhält man als Näherung die folgende Beziehung

$$k_\infty - k = \pi^2 \frac{L_S^2 + L^2}{R^2} \tag{11.6}$$

bzw.

$$R = \pi \sqrt{\frac{L_S^2 + L^2}{k_\infty - k}}. \tag{11.7}$$

L_S ist von der Größenordnung 10 cm (H_2O : 5,7 cm, D_2O : 11,0 cm; Be : 9,9 cm; C : 18,7 cm); außerdem gilt in den meisten praktisch wichtigen Fällen $L^2 \ll L_S^2$. Mit Hilfe dieser Näherungsgleichung kann die kritische Größe von kugelförmigen Kernreaktoren abgeschätzt werden ($k = 1$).

Die verzögerten Neutronen (vgl. Abschn. 8.8.) spielen für den praktischen Betrieb eines Reaktors eine wichtige Rolle, weil sie eine erhebliche Erhöhung der Zeit bewirken, die zur Regelung zur Verfügung steht.

Die wichtigsten Kernbrennstoffe sind U–235, Pu–239 und U–233. Von diesen kommt nur das U–235 in der Natur vor, und zwar in geringer Konzentration neben U–238 (1 : 140). Die Anreicherung des U–235 durch Isotopentrennung ist verhältnismäßig aufwendig (vgl. Kap. 4). Die anderen Nuklide, Pu–239 und U–233, müssen künstlich hergestellt werden. Sie entstehen durch folgende Kernreaktionen:

$$^{238}\mathrm{U}(\mathrm{n},\gamma)^{239}\mathrm{U} \xrightarrow[23{,}5\,\mathrm{min}]{\beta^-} {}^{239}\mathrm{Np} \xrightarrow[2{,}35\,\mathrm{d}]{\beta^-} {}^{239}\mathrm{Pu}, \tag{11.8}$$

$$^{232}\mathrm{Th}(\mathrm{n},\gamma)^{233}\mathrm{Th} \xrightarrow[22{,}2\,\mathrm{min}]{\beta^-} {}^{233}\mathrm{Pa} \xrightarrow[27{,}0\,\mathrm{d}]{\beta^-} {}^{233}\mathrm{U}. \tag{11.9}$$

Die technische Durchführung dieser Kernreaktionen in sog. Brutreaktoren ist von großem praktischem Interesse, da der Vorrat an Kern-

brennstoffen in der Natur begrenzt ist. Dabei ist wichtig, daß pro Kernspaltung im Mittel mehr als 2 Neutronen entstehen. Eines dieser beiden Neutronen wird für die Kettenreaktion benötigt. Wenn die Neutronenverluste im Reaktor so niedrig gehalten werden können, daß ein weiteres Neutron für eine der beiden Kernreaktionen (11.8) bzw. (11.9) zur Verfügung steht, dann entsteht pro gespaltenem Atom ein neues spaltbares Atom. Dies ist das Prinzip eines Brüters.

Die beiden wichtigen Bestandteile eines Brutreaktors sind der Spaltstoff und der Brutstoff. Als Kombinationen kommen in Frage U–238 (Brutstoff)/Pu–239 (Spaltstoff) oder Th–232 (Brutstoff)/U–233 (Spaltstoff). Für die Eignung eines Spaltstoffes in einem Brutreaktor ist die Größe η entscheidend, die angibt, wieviele Spaltneutronen für ein im Brutstoff absorbiertes Neutron gebildet werden. Für Plutonium und thermische Neutronen ist $\nu = 2{,}89$ und $\eta = 2{,}11$. Der Wert von η steigt an, wenn schnelle Neutronen verwendet werden. Deshalb ist im Falle von Plutonium ein „thermischer Brüter" nur sehr schwer realisierbar, wohl aber ein „schneller Brüter". Günstiger liegen die Verhältnisse für den thermischen Brüter im Falle der Kombination $^{232}Th/^{233}U$. Für U–233 und thermische Neutronen ist $\eta = 2{,}28$. Bei Verwendung von schnellen Neutronen steigt η nur verhältnismäßig wenig an, so daß für die Erzeugung von U–233 bevorzugt ein thermischer Brüter geeignet ist.

11.2. Chemische Probleme im Zusammenhang mit dem Betrieb von Kernreaktoren (Überblick)

Im Hinblick auf den Betrieb von Kernreaktoren ergeben sich sehr viele chemische Probleme, die in einer Übersicht (Abb. (11–5)) zusammengestellt sind. Der Weg des Kernbrennstoffs Uran beginnt bei den Uranerzen, aus denen chemisch reine Uranverbindungen gewonnen werden. Diese können entweder in der natürlichen Isotopenzusammensetzung verwendet oder nach Überführung in eine geeignete chemische Form einer Isotopentrennanlage zugeführt werden. Plutonium entsteht nach Gl. (11.8) in den Reaktoren aus U–238.

Die Kernbrennstoffe werden zu Brennstoffelementen verarbeitet, die zum Teil verhältnismäßig kompliziert aufgebaut sind, weil sie den Betriebsanforderungen in einem Kernreaktor entsprechen müssen. Deshalb sind die Kosten für die Anfertigung der Brennstoffelemente im Mittel etwa ebenso hoch wie die Kosten für die Gewinnung der Kernbrennstoffe.

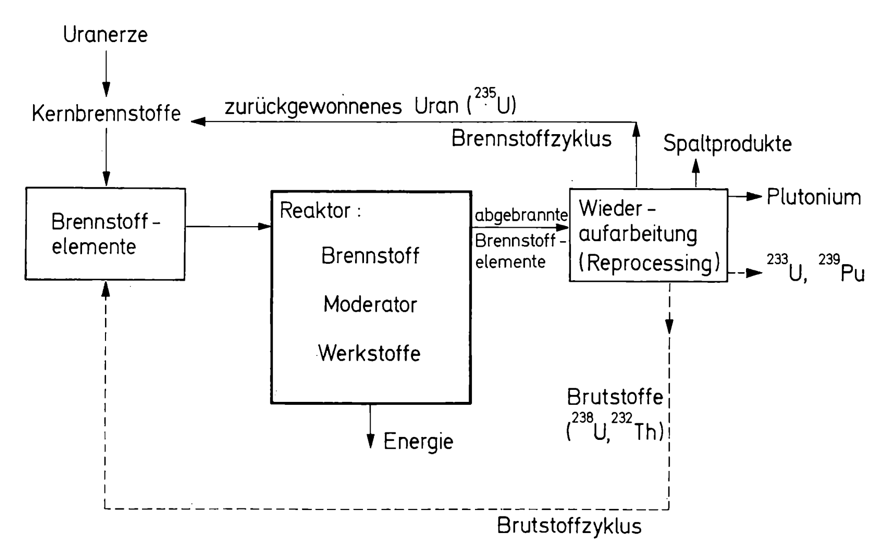


Abb. (11–5) Übersicht über die stofflichen Probleme im Zusammenhang mit dem Betrieb eines Reaktors.

Im Reaktor findet eine Vielzahl von chemischen Vorgängen statt, die sowohl die Kernbrennstoffe als auch den Moderator und die Reaktorwerkstoffe betreffen. Die Brennstoffelemente bleiben im allgemeinen längere Zeit im Reaktor — meist mehrere Jahre. Während dieser Zeit ändert sich die chemische Zusammensetzung sehr stark. Der Kernbrennstoff wird gespalten; dabei entsteht eine Vielzahl von hochradioaktiven Spaltprodukten. Der Multiplikationsfaktor wird während dieses sog. Abbrandes der Brennstoffelemente kleiner, weil die Konzentration des Kernbrennstoffs im Brennstoffelement abnimmt und die Spaltprodukte Neutronen absorbieren. Besonders hohe Absorptionsquerschnitte besitzen z. B. das ^{135}Xe (Spaltausbeute 6,4%, $\sigma_a = 2{,}7 \cdot 10^6$b) und eine größere Zahl der Lanthaniden. Diese hohe Neutronenabsorption kann nur durch einen entsprechenden Überschuß an Kernbrennstoffen ausgeglichen werden. Bei einem bestimmten Abbrand wird die weitere Verwendung der Brennstoffelemente jedoch unwirtschaftlich. Die Grenze ist abhängig von der Art des Reaktors und der Brennstoffelemente; sie liegt zwischen etwa 20 und 80% des ursprünglichen Gehalts an Kernbrennstoffen. Dann werden die Brennstoffelemente aus dem Reaktor entfernt und zur Abschirmung und Kühlung mehrere Monate unter Wasser gelagert, bis die kurzlebigen Spaltprodukte zerfallen sind.

Da die Brennstoffelemente noch spaltbares Material und außerdem weitere wertvolle Bestandteile — z. B. Transuranelemente — enthal-

ten, werden sie im allgemeinen einer Wiederaufarbeitung („reprocessing“) zugeführt. Auch im Hinblick auf die langfristige Lagerung der hochradioaktiven Spaltprodukte ist die Wiederaufarbeitung der Brennstoffelemente zweckmäßig. Diese kann entweder auf nassem oder trockenem Wege erfolgen. In der Technik sind nasse Verfahren gebräuchlich; die Anwendbarkeit trockener Verfahren wird untersucht.

Ziel der Wiederaufarbeitung ist stets die Trennung der spaltbaren Stoffe und der Spaltprodukte. In den meisten Fällen besteht die Aufgabe darin, eine Trennung Uran/Plutonium/Spaltprodukte durchzuführen. Der abgetrennte Kernbrennstoff kann wieder für die Herstellung von Brennstoffelementen verwendet werden; damit ist der Brennstoffzyklus geschlossen (vgl. Abb. (11–5)). In Brutreaktoren erweitern sich die chemischen Aufgaben, sofern Brennstoff und Brutstoff als Gemisch eingesetzt werden. Dann ist bei der Wiederaufarbeitung die Trennung Brennstoff/Brutstoff/Spaltprodukte notwendig. Wenn Uran–238 als Brutstoff verwendet wird, ist die Wiederaufarbeitung ähnlich wie bei normalen Uran-haltigen Brennstoffen. Liegt dagegen eine Mischung von Uran als Brennstoff und Thorium als Brutstoff vor, so ist bei der Wiederaufarbeitung die Trennung Uran/Thorium/Plutonium/Spaltprodukte erforderlich. Der Brutstoff kann nach der Aufarbeitung ebenfalls wieder verwendet werden; dadurch wird der Brutstoffzyklus geschlossen (vgl. Abb. (11–5)).

Die hochradioaktiven Abfälle der Wiederaufarbeitung enthalten die Spaltprodukte und daneben zum Teil künstliche Elemente, die durch (n, γ)-Reaktionen entstehen, z. B. Np–237. Die Radioaktivität dieser Spaltproduktgemische ist nach einer Lagerung von einigen Monaten ungefähr von der Größenordnung 1 kCi pro g Kernbrennstoff. Die Jahresproduktion an Spaltproduktgemischen in Kernreaktoren wird in der Welt in absehbarer Zeit die Größenordnung 10^{12} Ci/Jahr erreichen. Die Weiterverarbeitung der hochradioaktiven Spaltproduktgemische ist deshalb eine Aufgabe von großer praktischer Bedeutung. Sicherheitsfragen stehen dabei im Vordergrund.

11.3. Kernbrennstoffe

Die wichtigsten Daten der Kernbrennstoffe U–235, U–233 und Pu–239 sind in Tab. 11.1. zusammengestellt.

Der Weg von den Uranerzen zu den Kernbrennstoffen besteht aus den folgenden Teilschritten:

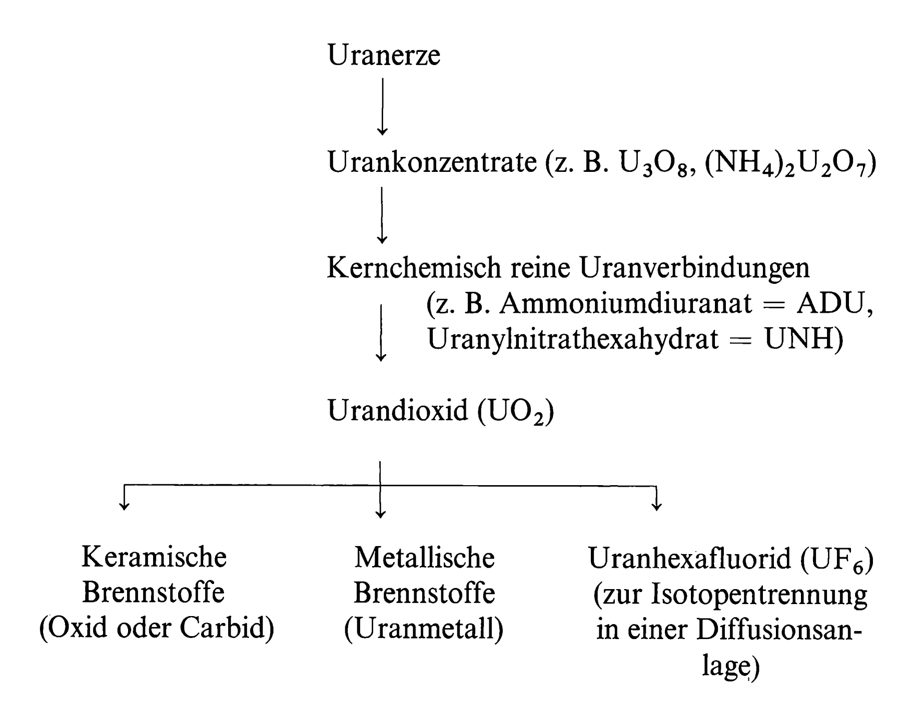


Tabelle 11.1.
Die wichtigsten Daten der Kernbrennstoffe

	U–233	U–235	Pu–239
Halbwertzeit $t_{1/2}$ in a	$1{,}62 \cdot 10^5$	$7{,}1 \cdot 10^8$	$2{,}44 \cdot 10^4$
Wirkungsquerschnitt $\sigma_{n,\gamma}$ für therm. Neutronen in barn	49	101	274
Wirkungsquerschnitt $\sigma_{n,f}$ für therm. Neutronen in barn	524	577	741
Zahl der Neutronen ν, die bei der Spaltung mit therm. Neutronen frei werden	2,51	2,43	2,89

Die durchschnittliche Konzentration des Urans in der Erdkruste beträgt nur 0,0003%. Hochprozentige Erzlager sind selten (z. B. Joachimstal/Böhmen, Belgisch-Kongo, Kanada). Etwa 100 verschiedene Uranminerale sind bekannt (vgl. Tab. 1.1.). Viele Uranerze enthalten allerdings nur etwa 0,1 bis 1% Uran.

Die wichtigsten Schritte der Uranerz-Aufbereitung sind aus dem folgenden Schema erkennbar:

Uranerze (0,1 – 1% U)

↓ Physikalische Anreicherung (Für Erze mit zu geringem Urangehalt sind chemische Verfahren oft zu teuer). Folgende Verfahren der physikalischen Anreicherung kommen in Frage: Mahlen und Flotation (Trennung nach der Dichte); Trennung auf Grund der magnetischen Suszeptibilität; Sortierung mit Geigerzähler und Sortiermaschine.

Physikalische Konzentrate (5 – 30% U)

↓ Chemische Behandlung

Säure: H_2SO_4 (evtl. Oxydationsmittel für Fe^{II} bzw. U^{IV}, z. B. MnO_2)	Alkali (seltener angewandt): Soda
↓	↓
$UO_2(SO_4)_2^{--}$ u. a. Sulfatokomplexe	$UO_2(CO_3)_2^{--}$ u. a. Carbonatokomplexe

↓

Anionenaustauscher (diskontinuierlich) Komplexe Anionen bleiben auf der Säule; Elution des Urans mit Säuren, die keine anionischen Komplexe bilden, z. B. 1 m NH_4NO_3 + HNO_3	Extraktion (kontinuierlich) in Extraktionskolonnen, Mischer-Abscheidern u. a., z. B. mit Tributylphosphat (TBP) oder langkettigen Aminen in Kerosin; Bildung von extrahierbaren Komplexverbindungen; anschließend Rückextraktion in verdünnte Salpetersäure; Eindampfen
↓ Fällung, z. B. mit NH_3	↓
$(NH_4)_2U_2O_7$	$UO_2(NO_3)_2 \cdot 6\,H_2O$

Tabelle 11.2.
Langlebige Folgeprodukte des U–238 und des U–235 im säkularen radioaktiven Gleichgewicht

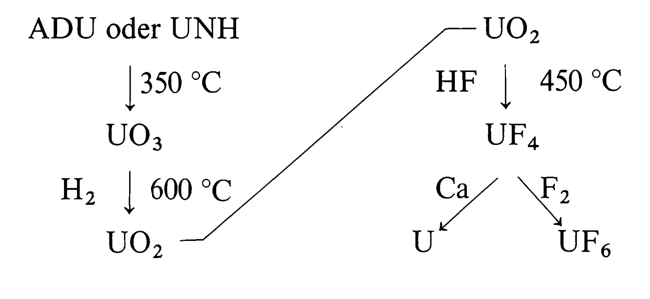
Ordnungszahl Z	Element	Massenzahl Uranreihe $4n + 2$	Massenzahl Actiniumreihe $4n + 3$	Name	Halbwertzeit $t_{1/2}$
92	U	238		Uran I	$4{,}51 \cdot 10^9$ a
			235	Actinouran	$7{,}1 \cdot 10^8$ a
		234		Uran II	$2{,}47 \cdot 10^5$ a
91	Pa		231	Protactinium	$3{,}25 \cdot 10^4$ a
90	Th	234		Uran X_1	24,1 d
			231	Uran Y	25,5 h
		230		Ionium	$8{,}0 \cdot 10^4$ a
			227	Radioactinium	18,2 d
89	Ac		227	Actinium	21,6 a
88	Ra	226		Radium	1 602 a
			223	Actinium X	11,43 d
86	Rn	222		Radon	3,8 d
84	Po	210		Radium F	138,4 d
83	Bi	210		Radium E	5,0 d
82	Pb	210		Radium D	21 a
			207	—	stabil
		206		—	stabil

In den Uranerzen sind im säkularen radioaktiven Gleichgewicht mit Uran wägbare Mengen der langlebigen Folgeprodukte enthalten, die in Tab. 11.2. zusammengestellt sind. Durch die großtechnische Verarbeitung der Uranerze fallen Th–230, Pa–231, Ra–226 und Pb–210 in Mengen von vielen Hundert Gramm an. Diese Radionuklide besitzen zum Teil praktisches Interesse. Aus Gründen des Strahlenschutzes (Radioaktivität des Abwassers und der Rückstände) ist in vielen Fällen die Abtrennung dieser langlebigen, stark radioaktiven Substanzen wichtig. Th–230 besitzt Bedeutung für die Herstellung von Pa–231 und U–232 und kann nach einer geeigneten Voranreicherung (z. B. durch Fällung) durch Extraktion mit Tributylphosphat (TBP) und Rückextraktion in 0,1 m Salpetersäure gewonnen werden. Pa–231 ist das langlebigste Isotop des Protactiniums und deshalb für Untersuchungen über die Chemie dieses Elements von großer Bedeutung. Eine Aktivität von 1 Ci entspricht einer Menge von etwa 20 g. Das Protactinium bleibt infolge der starken Hydrolyse seiner Verbindungen zum großen Teil im Rückstand der Uranerzverarbeitung —

im Gegensatz zum Thorium; es kann daraus durch Behandlung mit Salzsäure gewonnen und durch Extraktionsverfahren gereinigt werden. Radium und Blei bleiben beim Aufschluß der Erze mit Schwefelsäure im Rückstand; zu ihrer Gewinnung ist ein alkalischer Aufschluß des Rückstandes erforderlich. Werden die Erze dagegen mit Salpetersäure aufgeschlossen — was in manchen französischen Anlagen üblich ist —, so lassen sich Radium und Blei nach der Abtrennung des Urans in verhältnismäßig einfacher Weise gewinnen.

Die noch unreinen Uranverbindungen aus der Uranerzaufbereitung werden — meist in zentralen Fabriken — zu kernchemisch reinen („nuklear reinen") Uranverbindungen weiterverarbeitet. Die Bezeichnung „nuklear rein" bedeutet, daß die Verbindungen praktisch frei sind von Nukliden mit einem hohen Einfangquerschnitt für thermische Neutronen, z. B. Bor, Cadmium und Seltene Erden. Zu diesem Zweck sind hochwirksame Trennverfahren erforderlich. Am besten geeignet ist eine mehrstufige Extraktion. Durch die Anwendung der Extraktion in der Kerntechnik wurde die Entwicklung moderner Extraktionsverfahren entscheidend befruchtet. Gebräuchlich für die Reinigung des Urans sind Ausgangslösungen mit einem Gehalt von etwa 300 g U/l und 60 bis 180 g überschüssiger HNO_3/l, die in einem ersten Extraktor mit Tributylphosphat (TBP) in Kerosin extrahiert werden; die Rückextraktion erfolgt in einem zweiten Extraktor, z. B. bei 60 °C mit Wasser. Durch Eindampfen wird $UO_2(NO_3)_2 \cdot 6\,H_2O$ = UNH, durch Fällen mit Ammoniak $(NH_4)_2U_2O_7$ = ADU erhalten. In diesem Stadium ist das Uran am reinsten. Der Gehalt an Bor und Cadmium ist kleiner als 1 ppm. Bei allen weiteren Operationen werden wieder Verunreinigungen eingeschleppt.

Die weitere Verarbeitung der nuklear reinen Verbindungen ist in dem folgenden Schema zusammengefaßt:



Die Darstellung des UF_4 kann diskontinuierlich in demselben Reaktionsgefäß durchgeführt werden oder kontinuierlich auf einem Rost

bzw. im Wirbelschichtverfahren. Das letztgenannte Verfahren eignet sich am besten für die Großproduktion. Die Reaktion

$$UO_3 + H_2 \longrightarrow UO_2 + H_2O \qquad (11.10)$$

ist stark exotherm und verläuft praktisch vollständig. Die Reaktion

$$UO_2 + 4\,HF \rightleftharpoons UF_4 + 2\,H_2O \qquad (11.11)$$

ist ebenfalls exotherm, führt aber zu einem Gleichgewicht. Zwischenprodukte der Reaktion (11.11) sind nicht faßbar. Sie beginnt oberhalb 200 °C und ist abhängig von der Teilchengröße. Das Urantetrafluorid ist eine grüne kristalline Substanz und wird oft als „grünes Salz" bezeichnet. Es ist isomorph mit ZrF_4, HfF_4 und ThF_4, reaktionsträge und sehr wenig löslich in Wasser (10^{-4} Mol/l). Bei höherer Temperatur tritt unter dem Einfluß von Wasserdampf Hydrolyse ein, die durch U_3O_8 katalysiert wird.

Da die Bildungswärme von CaF_2, MgF_2 und NaF größer ist als die des UF_4, kann die Reduktion des UF_4 zu Uranmetall mit Calcium, Magnesium oder Natrium erfolgen. Die Reduktion mit Natrium erfordert wegen des niedrigen Siedepunktes von Natrium (880 °C) die Verwendung eines Druckgefäßes. Deshalb wird in der Praxis Calcium oder Magnesium bevorzugt

$$UF_4 + 2\,Ca\,(Mg) \longrightarrow U + 2\,CaF_2\,(MgF_2). \qquad (11.12)$$

Diese Reaktion ist sehr stark exotherm und setzt oberhalb 1 132 °C ein (Schmelzpunkt des Urans). Die Reaktionswärme reicht aus, um das Uran und die Reaktionsprodukte zum Schmelzen zu bringen. Wegen der hohen Dichte des Urans ($\rho \approx 19\,g/cm^3$) gegenüber Calcium und Urantetrafluorid ($\rho \approx 2\,g/cm^3$) erhält man aus einer großen Substanzmenge einen verhältnismäßig kleinen Regulus von metallischem Uran. Man stellt auf diese Weise bis zu etwa 2 t Uran im Einzelansatz her. Wichtig ist die Reinheit des Calciums bzw. Magnesiums. Die Reduktion mit Calcium kann in Anwesenheit von Luft erfolgen, weil sich eine Schutzschicht von Calciumfluorid bildet.

Bei der Reduktion der Oxide entsteht Uranpulver:

$$UO_2 + 2\,Ca \longrightarrow U + 2\,CaO. \qquad (11.13)$$

Auch CaH_2 kann für diese Reduktion verwendet werden. Mit Mag-

nesium wird ein pyrophores Produkt erhalten. Die Elektrolyse in einer Salzschmelze — z. B. im System NaCl/KCl (eutektisches Gemisch) + UCl_3 oder UF_4 — führt ebenfalls zu Uranpulver. Für die Darstellung von kleinen Mengen Uran ist auch die thermische Zersetzung von UJ_3 an einem heißen Draht (Wolframdraht, 1300 bis 1600 °C, van Arkel-Verfahren) geeignet.

Uranhexafluorid, das für die Isotopentrennung von U–235 und U–238 in Gasdiffusionsanlagen verwendet wird (vgl. Kap. 4), kann leicht durch Fluorierung von Urantetrafluorid hergestellt werden. Als Fluorierungsmittel sind Fluor, ClF_3 oder BrF_3 geeignet (z. B. Fluorgas bei 500 °C oder flüssiges Chlortrifluorid bei Raumtemperatur):

$$3\,UF_4 + 2\,ClF_3 \longrightarrow 3\,UF_6 + Cl_2. \tag{11.14}$$

Die Reaktion verläuft vollständig — im Gegensatz zur Fluorierung des Plutoniums. Uranhexafluorid ist farblos und bei Raumtemperatur fest. Es sublimiert bei 56 °C,ohne zu schmelzen. Die Fluorierung wird meist in einem kontinuierlichen Prozeß in Behältern aus Monelmetall ausgeführt. Zwischenprodukte der Fluorierung sind UF_5, U_2F_9, U_4F_{17}; ihr Anteil ist bei tieferer Temperatur größer. Auch mit Sauerstoff tritt bei höherer Temperatur eine Reaktion ein:

$$2\,UF_4 + O_2 \longrightarrow UF_6 + UO_2F_2. \tag{11.15}$$

Das feste UO_2F_2 tritt als Nebenprodukt auf.

Im Anschluß an die Isotopentrennung U–235/U–238 wird das Uranhexafluorid zu UO_2, UF_4 bzw. Uranmetall weiterverarbeitet. Wegen der Gefahr der Kritikalität müssen diese Umsetzungen in kleinen Mengen durchgeführt werden (etwa im 1- bis 10-kg-Maßstab). In einem diskontinuierlichen Prozeß sind folgende Schritte möglich: Hydrolyse des Uranhexafluorids, Fällung als Ammoniumdiuranat (ADU), Erhitzen und Umwandlung mit Wasserstoff in Urandioxid sowie mit Fluorwasserstoff in Urantetrafluorid. Als kontinuierliche Prozesse bieten sich an: Die Reduktion des Uranhexafluorids zu Urantetrafluorid mit Wasserstoff oder mit gasförmigem Trichloräthylen (dabei entsteht neben Urantetrafluorid ein Gemisch von Fluorwasserstoff und Chlorfluorkohlenwasserstoffen).

11.4. Brennstoffelemente

Die Ausführung der Brennstoffelemente hängt entscheidend vom Reaktortyp ab, insbesondere von den Betriebsbedingungen. In homogenen Reaktoren werden keine Brennstoffelemente benötigt; die Kernbrennstoffe werden in gelöster Form (z. B. als Uranylsulfat oder ^{15}N-Uranylnitrat) eingesetzt. In heterogenen Reaktoren werden metallische Brennstoffelemente (Uranmetall), keramische Brennstoffelemente (z. B. UO_2, UC) oder Matrixelemente (Einbettung des Brennstoffs in feinverteilter Form) verwendet. Die wichtigsten Gesichtspunkte für die Konstruktion der Brennstoffelemente sind: Zurückhalten der Spaltprodukte, Verhinderung der Korrosion des Brennstoffs, guter Wärmeübergang und Auswechselbarkeit der Brennstoffelemente.

Das Verhalten der metallischen Brennstoffelemente wird in erster Linie durch die Eigenschaften des Urans bestimmt. Die verschiedenen Modifikationen des Urans sind in Tab. 11.3. aufgeführt. Durch die an-

Tabelle 11.3.
Modifikationen des Urans

Name	Temperaturbereich in °C	Kristallgitter	Dichte in g cm^{-3}
α-Uran	bis 668	orthorhombisch	19,04 (25 °C)
β-Uran	668 bis 774	tetragonal	18,11 (720 °C)
γ-Uran	774 bis 1132	kubisch raumzentriert	18,06 (805 °C)

isotrope Ausdehnung (Abb. (11–6)), die zu plastischen Deformationen führt, wird die Verwendbarkeit des Urans stark eingeschränkt. Auch die Einwirkung der Strahlung kann Deformationen (Strahlenschäden) bewirken. Die starke Dichteänderung bei der Umwandlung von der α- zur β-Modifikation (vgl. Tab. 11.3.) bewirkt, daß Brennstoffelemente aus metallischem Uran höchstens auf etwa 660 °C erhitzt werden dürfen. Wegen dieser nachteiligen Eigenschaften des Urans versucht man, die isotrope γ-Phase durch Legierungszusätze zu stabilisieren. Allerdings ist das Lösungsvermögen des Urans für andere Metalle verhältnismäßig gering; nur Molybdän, Niob, Titan und Zirkonium werden in größeren Mengen aufgenommen. Durch Zusatz von 7% Molybdän wird zwar eine Stabilisierung der γ-Phase bei Zimmertemperatur erreicht, aber der hohe Neutroneneinfang des Mo-

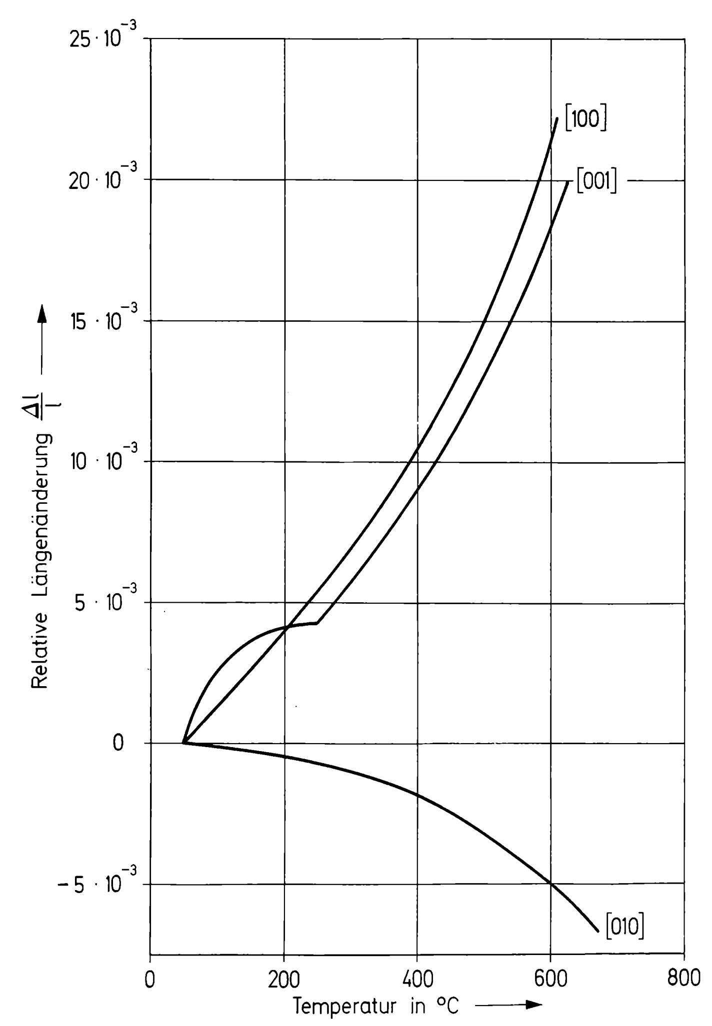


Abb. (11–6) Anisotrope Ausdehnung des Urans; relative Längenänderung in den verschiedenen Achsenrichtungen.

lybdäns muß durch Verwendung von angereichertem Uran — d. h. Uran mit einem höheren Gehalt an U–235 — kompensiert werden.

Um das Entweichen von Spaltprodukten und die Korrosion des Urans zu verhindern, wird dieses ummantelt („Canning"). Die Ummantelung darf weder mit dem Uran noch mit dem Kühlmittel reagieren; sie muß außerdem hohe Wärmeleitfähigkeit sowie gute mechanische Eigenschaften und vor allen Dingen eine niedrige Neutronenabsorption besitzen. In Tab. 11.4. sind die Eigenschaften einiger Stoffe zusammengestellt, die für die Ummantelung in Frage kommen. Alu-

Tabelle 11.4.
Eigenschaften einiger Metalle, die für die Ummantelung von Brennstoffelementen in Frage kommen

Element	Ordnungszahl Z	Einfangquerschnitt für therm. Neutronen σ_a in barn	Schmp. in °C	Wärmeleitfähigkeit λ bei 20 °C in cal cm^{-1} s^{-1} $grad^{-1}$	spez. Wärme c_p in cal g^{-1} $grad^{-1}$	therm. Ausdehnungskoeffizient in $grad^{-1}$	Dichte bei 20 °C in g cm^{-3}
Be	4	0,01	1285	0,38	0,43 (20 °C)	$11,6 \cdot 10^{-6}$	1,848
Mg	12	0,063	650	0,376	0,25 (25 °C)	$25,8 \cdot 10^{-6}$	1,74
Zr	40	0,18	1845	0,57	0,080 (200 °C)	$6,11 \cdot 10^{-6}$	6,51
Al	13	0,23	660,2	0,503	0,208 (0 °C)	$23,8 \cdot 10^{-6}$	2,699
Nb	41	1,1	2468	0,132	0,065 (0 °C)	$7,2 \cdot 10^{-6}$	8,57
Fe	26	2,6	1539	0,18	0,113 (20 °C)	$11,7 \cdot 10^{-6}$	7,866
V	23	4,9	1710	0,074 (100 °C)	0,120 (0 °C)	$8,3 \cdot 10^{-6}$	6,11
Mo	42	2,7	2622	0,32 (0 °C)	0,0589 (0 °C)	$5,1 \cdot 10^{-6}$	10,22
Ta	73	21	2996	0,130	0,036 (20 °C)	$6,5 \cdot 10^{-6}$	16,6
W	74	19	3410	0,40 (0 °C)	0,0328 (20 °C)	$4,98 \cdot 10^{-6}$	19,30

minium besitzt viele Vorzüge, reagiert aber bei höherer Temperatur mit Uran unter Bildung intermetallischer Phasen, wie UAl_3. Magnesium kam in dem ersten Kernkraftwerk zur Verwendung, das 1956 in Calder Hall (England) in Betrieb genommen wurde. Die mechanischen Eigenschaften begrenzen jedoch die Arbeitstemperatur auf maximal 400 °C. Beryllium besitzt bis 600 °C gute mechanische Eigenschaften, ist jedoch in Gegenwart von Wasser und Wasserdampf nicht korrosionsfest. Die Giftigkeit und die hohen Herstellungskosten sind wesentliche Nachteile des Berylliums. Zirkonium ist gegen Wasser sehr korrosionsbeständig und eignet sich auch bei hoher Wärmebelastung recht gut als Ummantelung. Es ist sogar gegen flüssiges Natrium verhältnismäßig beständig. Allerdings ist vor der Verwendung des Zirkoniums in Kernreaktoren eine recht kostspielige Reinigung erforderlich, um das Hafnium abzutrennen, welches das Zirkonium begleitet und einen hohen Einfangquerschnitt für Neutronen besitzt. Stahl hat zwar günstige mechanische Eigenschaften, muß aber wegen der hohen Neutronenabsorption in Form sehr dünner Bleche verwendet werden. Von Nachteil sind die mangelnde Korrosionsbeständigkeit gegen Wasser und Natrium und die Bildung eines Eutektikums mit Uran bei 500 °C. Niob und Vanadin besitzen diese letztgenannten Nachteile nicht; dafür ist ihre Herstellung sehr kostspielig. Niob wird zum Teil in sogenannten schnellen Reaktoren verwendet, bei denen seine erhöhte Neutronenabsorption nicht so sehr ins Gewicht fällt. Molybdän, Tantal und Wolfram sind wegen ihrer hohen Festigkeit und des hohen Schmelzpunktes ebenfalls von Interesse für die Verwendung in schnellen Reaktoren.

Tabelle 11.5.
Die wichtigsten Eigenschaften von Urandioxid und Urancarbid

	UO_2	UC
Dichte ρ bei 20 °C in g cm^{-3}	10,96	11,68
Schmp. in °C	2750	2375
Wärmeleitfähigkeit λ in cal cm^{-1} s^{-1} $grad^{-1}$	0,025	0,082
Spez. Wärme c_p in cal g^{-1} $grad^{-1}$	0,057 (bei 25 °C)	0,035 (bei 100 °C)
Therm. Ausdehnungskoeffizient α in $grad^{-1}$	$7{,}2 \cdot 10^{-6}$	—
Kristallgittertyp	kubisch raumzentriert (CaF_2)	tetragonal

Keramische Brennstoffelemente werden vorzugsweise aus Urandioxid oder aus Urancarbid hergestellt. Die Eigenschaften dieser Verbindungen sind in Tab. 11.5. aufgeführt. Die Vorzüge des Urandioxids sind der hohe Schmelzpunkt sowie die Beständigkeit gegen Wasserstoff, Wasser, Kohlendioxid und die Einwirkung von Strahlung. Die Nachteile beruhen vor allen Dingen auf der geringen Wärmeleitfähigkeit und Festigkeit. Diese Nachteile müssen durch Verwendung dünner ummantelter Stäbe ausgeglichen werden, die kleine Stücke von Urandioxid („pellets") enthalten.

Urandioxid zeigt die Besonderheiten einer nicht-stöchiometrischen Verbindung. Wenn es frisch mit Wasserstoff reduziert ist, besitzt es die Zusammensetzung $UO_{2,0}$. An der Luft nimmt es Sauerstoff auf. Die Zusammensetzung variiert mit dem Sauerstoffpartialdruck zwischen $UO_{2,0}$ und $UO_{2,25}$ ($= U_4O_9$). Urandioxid besitzt Fluoritstruktur (Calciumfluorid); in U_4O_9 befinden sich zusätzlich Sauerstoffatome auf Zwischengitterplätzen. Die Geschwindigkeit der Sauerstoffaufnahme hängt sehr stark von der Teilchengröße ab. Deshalb sind bei Urandioxid Angaben über den Sauerstoffgehalt und die Teilchengröße wichtig. Durch Pressen und Sintern werden aus pulverförmigem Urandioxid kompakte Stücke hoher Dichte hergestellt. Bei der Reduktion von Urantrioxid (vgl. Abschn. 11.3.) in einer sehr heißen Wasserstoff- oder Methanflamme schmilzt das entstehende Urandioxid und kann so direkt in kompakter Form erhalten werden.

Eine für technische Zwecke ebenfalls sehr wichtige Ausführungsform sind kleine beschichtete Teilchen („coated particles"). Die Herstellung erfolgt in der Weise, daß Urandioxidpulver durch eine heiße Zone hindurchgeschickt wird, in der die Teilchen zu kleinen Kügelchen von etwa 100 μm Durchmesser schmelzen, die anschließend mit einer Schutzschicht aus Graphit (oder Graphit und Siliciumcarbid) beschichtet werden.

Die Vorteile bei der Verwendung des metallähnlichen Uranmonocarbids UC sind die gute Wärmeleitfähigkeit und die verhältnismäßig hohe Festigkeit. Der Nachteil besteht in der geringen chemischen Beständigkeit. So findet in Wasser bereits unterhalb 100 °C eine lebhafte Zersetzung statt.

Urancarbid erscheint für die Verwendung in gasgekühlten Reaktoren geeignet. Zur Darstellung wird ein Gemisch von Urandioxid und Graphit im Vakuum auf etwa 1900 °C erhitzt; dabei entstehen kompakte Stücke von Urancarbid:

$$UO_2 + 3\,C \longrightarrow UC + 2\,CO. \qquad (11.16)$$

Auch Preßlinge aus Uranpulver und Graphit liefern beim Erhitzen auf etwa 1000 °C Uranmonocarbid. An feuchter Luft oxydiert sich das Uranmonocarbid langsam. Mit Kohlendioxid reagiert es nur in geringem Umfang. Gegen flüssiges Natrium ist es bis 500 °C beständig. Im Gegensatz zu Uranmonocarbid UC ist Urandicarbid UC_2 als Brennstoff ungeeignet; es zerfällt an feuchter Luft sehr rasch zu Pulver.

Da die erwähnten Stoffe, Uran, Urandioxid und Urancarbid, manche Nachteile besitzen, die ihre Verwendbarkeit einschränken, stellt man auch sogenannte Matrixelemente her. Bei diesen handelt es sich um die Dispersion einer spaltbaren Phase in feinverteilter Form in einer nicht spaltbaren Phase, die als Matrix dient. Man erreicht dadurch eine große Auswahl von Kombinationsmöglichkeiten und eine lange Lebenszeit der Brennstoffelemente, weil die durch die Spaltprodukte hervorgerufenen Schäden lokalisiert bleiben. Da die spaltbaren Stoffe in den Matrixelementen in verdünnter Form vorliegen, ist die Verwendung von angereichertem Uran oder Plutonium erforderlich. In Tab. 11.6. sind einige Uranverbindungen sowie einige Metalle aufgeführt, die für die Herstellung von Matrixelementen in Frage kommen. Es sind verschiedene Kombinationen möglich, z. B. UAl_2/Al, UO_2/Ni.

Tabelle 11.6.
Uranverbindungen und Metalle, die für die Herstellung von Matrixelementen in Frage kommen

Uranverbindungen			Matrixmetalle		
Verbindung	Dichte ρ bei 20 °C in $g cm^{-3}$	Schmp. in °C	Matrix	Schmp. in °C	Einfangquerschnitt für therm. Neutronen σ_a in barn
UAl_2	8,1	1590	Al	660	0,23
UAl_3	6,7	1320	Be	1285	0,010
UAl_4	6,0	730	Fe	1539	2,62
UC	11,68	2375	Mg	650	0,069
UO_2	10,96	2750	Ni	1455	4,6
U_3Si	15,6	930	Zr	1845	0,185

Besonders interessant ist die Verwendung von keramischen Brennstoffen in einem Metall als Matrix („cermet“), weil dadurch hohe Wärmeleitfähigkeit und hohe Festigkeit erreicht werden. Die Herstellung dieser „cermets“ erfolgt nach den Methoden der Pulvermetallurgie.

Beispielsweise kann man ein Gemisch von Aluminiumpulver und Urandioxid bzw. Plutoniumdioxid (Teilchengröße etwa 50 μm) pressen und bei 600 °C zu Blechen von 1 mm Stärke auswalzen. Der Gehalt an UO_2 oder PuO_2 kann bis zu 30 Volumenprozent betragen. Wichtig ist der Verteilungszustand des Spaltstoffs in der Matrix. Auch ein Brutstoff (z. B. Thorium) kann als Matrix dienen.

Eine weitere Möglichkeit zur Herstellung von Matrixelementen ist die Dispersion von keramischen Brennstoffen (UO_2, UC) in einer keramischen Matrix, z. B. in Oxiden, Carbiden, oder in Graphit. Berylliumoxid ist interessant, weil seine Wärmeleitfähigkeit bei 800 °C noch höher ist als die von Uranmetall; Magnesiumoxid, Aluminiumoxid, Zirkoniumoxid und Quarzglas werden in diesem Zusammenhang ebenfalls diskutiert, ferner Berylliumcarbid (Be_2C), Aluminiumcarbid (Al_4C_3) und Siliciumcarbid (SiC). Graphit besitzt sehr viele wünschenswerte Eigenschaften (gute Wärmeleitfähigkeit, hoher Schmelzpunkt), ist aber durchlässig für Spaltprodukte.

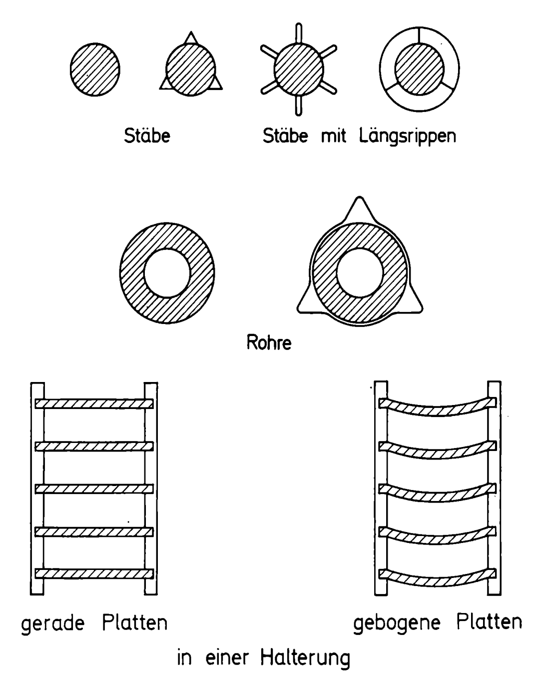


Abb. (11–7) Ausführungsformen von Brennstoffelementen (schematisch).

In Abb. (11–7) sind einige Ausführungsformen von Brennstoffelementen aufgezeichnet. Stabförmige Brennstoffelemente von etwa 1 Zoll Durchmesser, die metallisches Uran als Brennstoff enthalten,

werden in vielen gasgekühlten Reaktoren verwendet; Längsrippen auf der Oberfläche bewirken eine bessere Kühlung. Zur Aufnahme der „pellets“ aus Urandioxid verwendet man dünne Stäbe von etwa 1cm Durchmesser, die in Form von größeren Bündeln in den Reaktor eingeführt werden. Rohrförmige Brennstoffelemente besitzen eine größere Oberfläche und infolgedessen eine höhere thermische Belastbarkeit; außerdem können Bestrahlungen im Innenraum dieser Brennstoffelemente durchgeführt werden. Plattenförmige Brennstoffelemente erlauben eine sehr gute Wärmeabführung. Sie werden vorzugsweise für angereicherten oder Plutonium-haltigen Brennstoff verwendet (z. B. als Matrixelemente). Brennstoff- und Verarbeitungskosten sind dann einander angemessen. Diese Elemente setzt man häufig in Schwimmbadreaktoren und Materialprüfreaktoren ein. Kugelförmige Brennstoffelemente sind zur Verwendung in gasgekühlten Hochtemperaturreaktoren vorgesehen; sie können z. B. aus Graphit bestehen und mit Brennstoff gefüllt sein (Kugelhaufenreaktor).

11.5. Reaktortypen

Der erste Kernreaktor wurde von FERMI und Mitarbeitern unter der Tribüne eines Stadions in Chikago aufgebaut. Er war am 2.12.1942 kritisch; d. h., damals gelang es erstmals, die Kernspaltung als Kettenreaktion ablaufen zu lassen. Dieser Reaktor war aus Graphitblöcken, Natururanklötzen und Urandioxid aufgebaut. Er hatte das Aussehen eines Meilers und wurde deshalb als Atommeiler („pile“) bezeichnet. Strahlenschutz und Kühlung waren nicht vorhanden, die Wärmeleistung betrug 2 W. Anschließend wurde der erste größere Graphit-Forschungsreaktor in Oak Ridge (Tennessee, USA) aufgebaut. Er enthält 54 t Uranmetall in stabförmigen Brennstoffelementen, die in einem Graphitwürfel untergebracht sind. Dieser Graphitwürfel besteht aus Graphitblöcken und besitzt eine Kantenlänge von 5,6 m; er ist nach außen durch dicke Betonwände abgeschirmt (vgl. Abb. (11–8)). Die Wärmeleistung dieses Reaktors, der seit 1943 in Betrieb ist, beträgt 3800 kW. Ein ähnlicher Reaktor befindet sich im Kernforschungszentrum Harwell in England (Bepo). Nachdem man gefunden hatte, daß in einem solchen Reaktor nach der Reaktion (11.8) größere Mengen Plutonium entstehen, wurden 1943 und in den folgenden Jahren in Hanford (Wash., USA) mehrere große wassergekühlte mit Natururan betriebene Graphitreaktoren zur Erzeugung von Plutonium aufgebaut. Für Forschungszwecke und zur Erprobung von

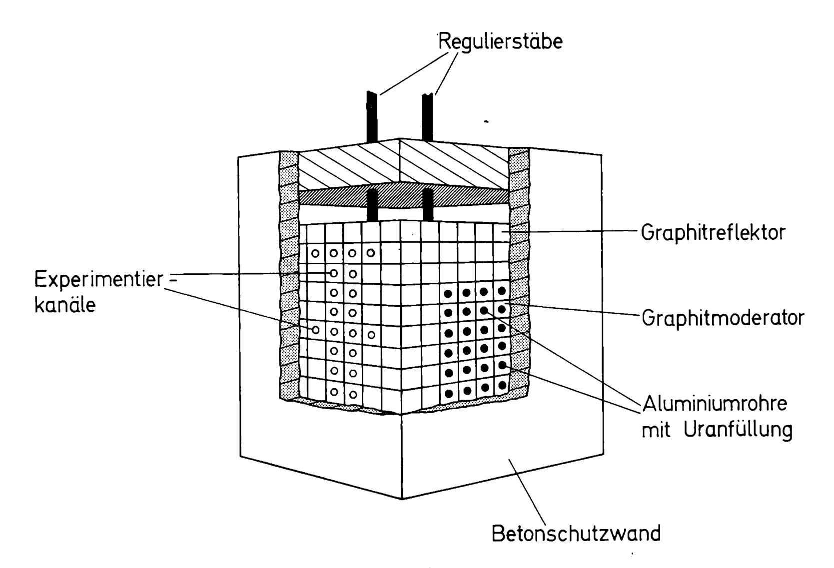


Abb. (11–8) Schema eines Natururan-Graphitreaktors.

Reaktorwerkstoffen wurden zahlreiche kleinere und größere Reaktoren entwickelt und gebaut. Beim Bau dieser Reaktoren standen zunächst militärische Gesichtspunkte im Vordergrund. Das in den Reaktoren erzeugte Plutonium diente zur Herstellung von Atombomben; die Wärme wurde ungenutzt abgeführt. Der Gedanke an eine wirtschaftliche Ausnutzung der Wärmeenergie setzte sich erst allmählich durch. Seit etwa 1950 beschäftigte man sich ernsthaft mit der wirtschaftlichen Nutzung der Energie in Leistungsreaktoren. Am 17. Oktober 1956 wurde das erste Atomkraftwerk in Calder Hall (England) in Betrieb genommen. Seit dieser Zeit hat man in vielen Ländern der Erde Kernkraftwerke errichtet.

Nach dem Verwendungszweck unterscheidet man Forschungsreaktoren (einschließlich Entwicklungs- und Materialprüfreaktoren), Brutreaktoren und Leistungsreaktoren. Wenn Brennstoff, Moderator und Kühlmittel in einer Phase vereinigt sind, spricht man von homogenen Reaktoren, andernfalls von heterogenen Reaktoren. Wichtig ist auch die Angabe des Spaltstoffs, z. B. Natururan, angereichertes Uran. Nach dem Moderator unterscheidet man Graphit-, Leichtwasser- und Schwerwasser-moderierte Reaktoren, nach dem Kühlmittel Gas-gekühlte, Wasser-gekühlte und Natrium-gekühlte Reaktoren.

Forschungsreaktoren besitzen je nach ihrer Aufgabe einen Neutronenfluß Φ zwischen 10^{11} und 10^{16} cm^{-2} s^{-1} und eine Leistung zwischen 10 kW und 100 MW. Da es auf die Nutzung der Wärme nicht

ankommt, werden sie bei möglichst niedriger Temperatur betrieben. Sie können mit verschiedenen Bestrahlungseinrichtungen versehen sein (Bestrahlungsrohre, Rohrpostanlagen, Neutronenfenster, thermische Säulen, Urankonverter, Kristallfilter). Die Bedeutung dieser Bestrahlungseinrichtungen wird in den Abschnitten 12.1. und 12.2. besprochen.

Beispiele von Forschungsreaktoren sind: der bereits oben erwähnte Forschungsreaktor im englischen Kernforschungszentrum Harwell (Natururan-Graphitreaktor, Abb. (11–8)), der Forschungsreaktor in München-Garching (Schwimmbadreaktor, Abb. (11–9)), der Forschungsreaktor in Frankfurt a. Main (homogener Siedewasserreaktor, Abb. (11–10)), der Forschungsreaktor Karlsruhe (Natururan-Schwerwasserreaktor) und der Forschungsreaktor Dido in Jülich (Schwerwasser-Tankreaktor). Einige Angaben über diese Reaktoren sind in Tab. 11.7. zusammengestellt.

Die wichtigste Aufgabe der Leistungsreaktoren ist die Energieproduktion. Gelegentlich wird die Produktion von Plutonium damit ge-

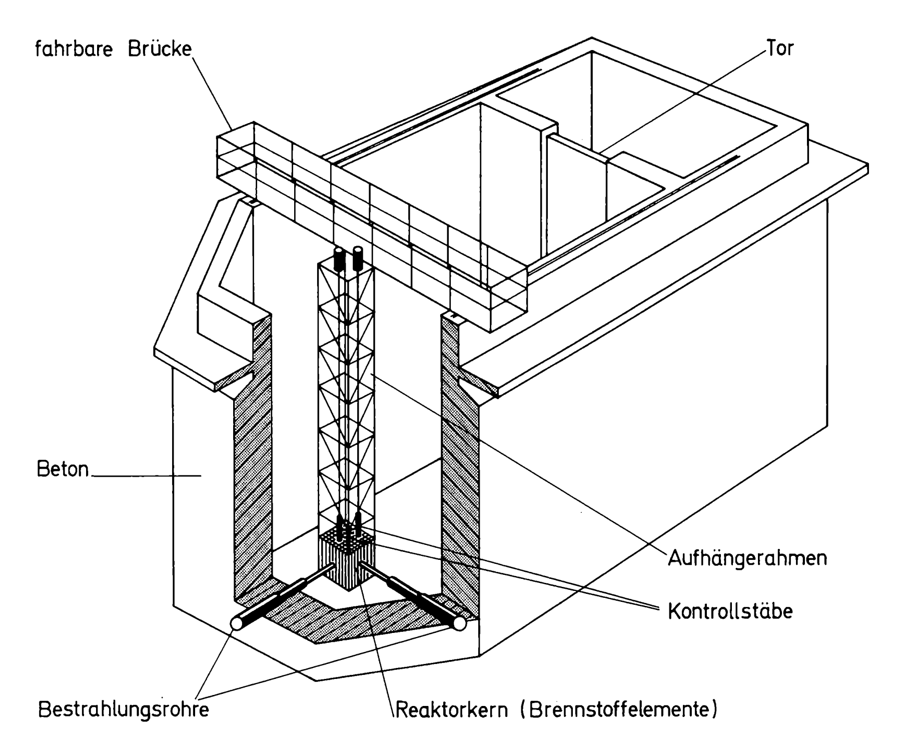


Abb. (11–9) Schema eines Schwimmbadreaktors.

Tabelle 11.7.
Angaben über einige Forschungsreaktoren

Typ	Brennstoff	Moderator	Kühlmittel	Reflektor	Leistung in MW	Neutronenfluß in $cm^{-2} s^{-1}$	zum Beispiel in
Natururan-Graphit-Reaktor	Natururan	Graphit	Gas (Luft)	Graphit	4 bis 30	$5 \cdot 10^{11}$ bis $5 \cdot 10^{12}$	Harwell/England (Bepo)
Natururan-Siedewasser-Reaktor	Natururan	D_2O	D_2O, H_2O	D_2O, Graphit	0,3 bis 40	$5 \cdot 10^{11}$ bis $6 \cdot 10^{13}$	Karlsruhe (FR 2)
Homogener Siedewasser-Reaktor	Angereichertes Uran, z. B. als Uranylsulfat	H_2O	H_2O	Graphit	0,01 bis 0,05	10^{11} bis $2 \cdot 10^{12}$	Frankfurt (FRF)
Schwimmbad-Reaktor	Angereichertes Uran (20–90%) als U–Al-Legierung	H_2O	H_2O	H_2O, Graphit	3 bis 30	10^{13} bis $2 \cdot 10^{14}$	München-Garching (FRM)
Schwerwasser-Tank-Reaktor	Angereichertes Uran (20–90%)	D_2O	D_2O	D_2O, Graphit	3 bis 20	10^{13} bis 10^{14}	Jülich (Dido)

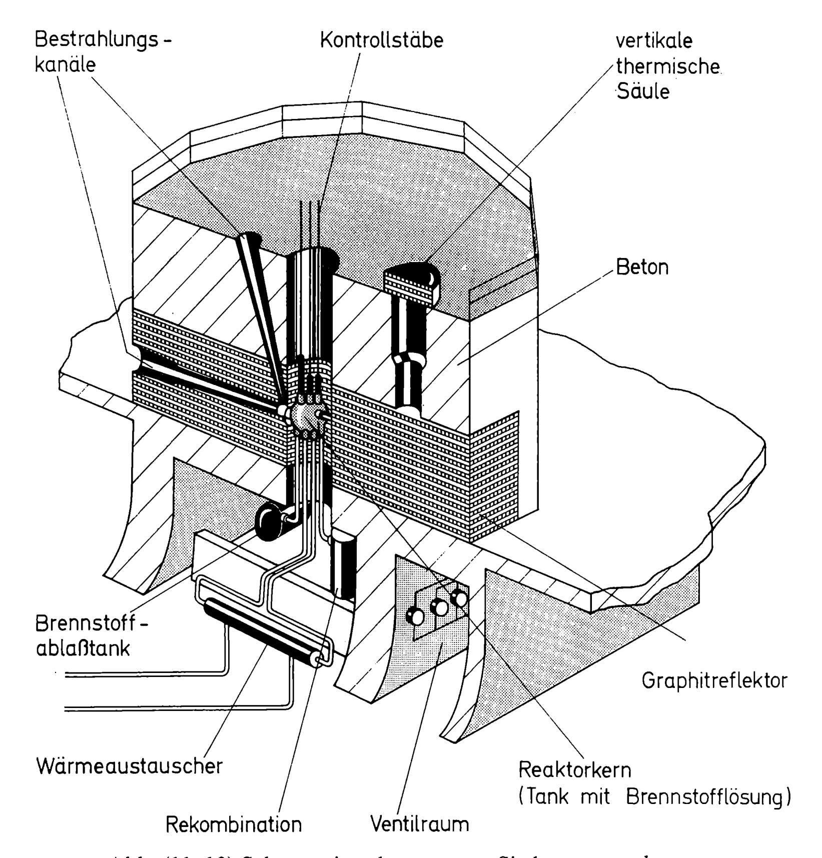


Abb. (11–10) Schema eines homogenen Siedewasserreaktors.

koppelt. Der thermodynamische Nutzeffekt ist um so größer, je höher die Betriebstemperatur im Reaktor ist. Diese hängt von der Art des Brennstoffs und der Brennstoffelemente ab. In den Leistungsreaktoren vom Calder Hall-Typ werden stabförmige Brennstoffelemente aus Uranmetall verwendet; die Ummantelung besteht aus einer Magnesiumlegierung (Magnox). Als Kühlgas dient Kohlendioxid, als Moderator Graphit. Die Betriebstemperatur beträgt 350 bis 400 °C, der Druck 15 at. Die Wärme wird in großen Wärmeaustauschern von dem Kohlendioxid auf Wasserdampf übertragen, der Turbinen antreibt.

Die Energieerzeugung in Kernkraftwerken ist seit einigen Jahren auch wirtschaftlich konkurrenzfähig mit anderen Energiequellen. Die Investitionskosten sind verhältnismäßig hoch, die Betriebskosten dagegen niedrig. Das Ergebnis einer Kostenberechnung hängt sehr stark davon ab, ob die Entwicklungskosten für einen bestimmten Reaktortyp und die Kosten für die Wiederaufarbeitung der Brennstoffelemen-

te hinzugerechnet bzw. der Wert des erzeugten Plutoniums abgezogen werden. Der Anreiz zum Bau von Leistungsreaktoren besteht besonders in solchen Ländern, die einen großen Energiebedarf haben und über verhältnismäßig wenig andere Energiequellen verfügen. Der Bedarf an elektrischer Energie ist in Abb. (11–11) aufgezeichnet. Es wird

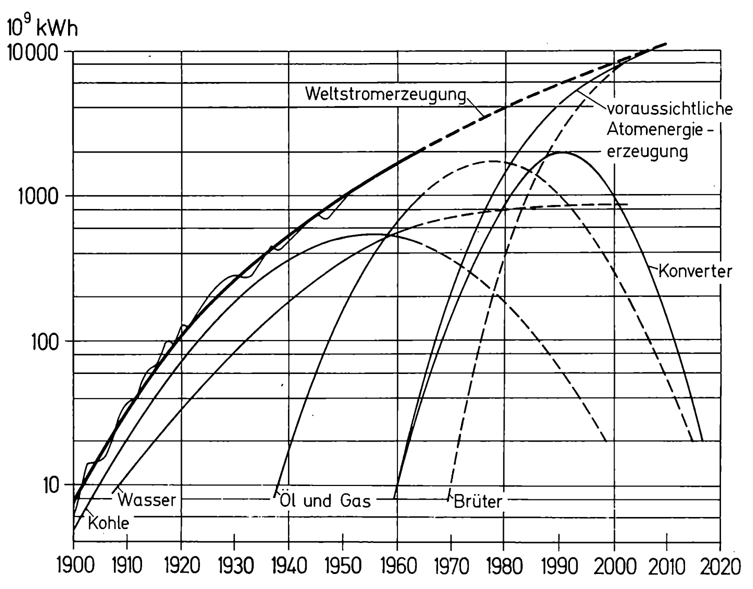


Abb. (11–11) Weltbedarf an elektrischer Energie. Aus S. BALKE: Kernkraftwerke und Industrie. Schriftenreihe des Deutschen Atomforums e. V., Heft 15, Bad Godesberg 1966.

Tabelle 11.8.
Überblick über die Zahl der Leistungsreaktoren in verschiedenen Ländern und die elektrische Gesamtleistung (Stand 1967)

Land	Anzahl der Leistungsreaktoren	elektrische Gesamtleistung in MW_{el}
Belgien	1	11
Bundesrepublik Deutschland	4	322
Großbritannien	26	4119
Frankreich	9	1652
Italien	3	607
Japan	2	172
Kanada	2	223
Norwegen	1	20
Schweden	1	60
Schweiz	1	8
Sowjetunion	14	1532
USA	31	2042

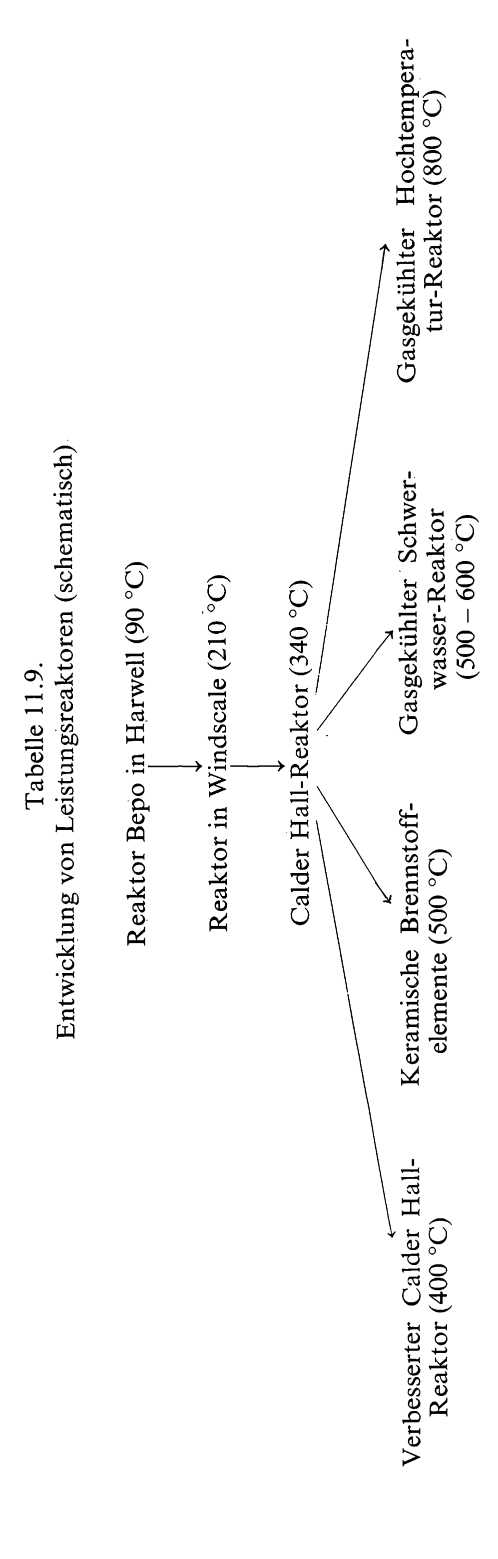


Tabelle 11.9.
Entwicklung von Leistungsreaktoren (schematisch)

angestrebt, die stetig wachsende Energielücke in zunehmendem Umfang durch Kernenergie zu decken. In manchen Ländern tragen die Kernkraftwerke bereits in einem beträchtlichen Umfang zur Energieproduktion bei. Tab. 11.8. gibt einen Überblick über die Zahl der in verschiedenen Ländern in Betrieb befindlichen Leistungsreaktoren und die elektrische Gesamtleistung dieser Reaktoren. Die Entwicklung der verschiedenen Typen von Leistungsreaktoren ist in Tab. 11.9. zusammengestellt.

Zu den Leistungsreaktoren gehören auch die Reaktoren für Schiffsantriebe. Beispiele für solche durch Kernreaktoren betriebenen Schiffe sind: Das deutsche Handelsschiff „Otto Hahn", das amerikanische U-Boot „Nautilus" und der russische Eisbrecher „Lenin". Neben ihrer Eignung für den Antrieb von Turbinen und die Produktion von elektrischer Energie gewinnen die Leistungsreaktoren auch für andere Zwekke wachsende technische Bedeutung. Ein großes Anwendungsgebiet ist die Meerwasserentsalzung, die für die Wasserversorgung und die Bewässerung unfruchtbarer Gebiete eine entscheidende Rolle spielt.

Brutreaktoren werden oft als „schnelle Reaktoren" betrieben (vgl. Abschn. 11.1.); d. h., sie enthalten keinen oder nur wenig Moderator, so daß der Fluß an energiereichen Neutronen und der Anteil der Spaltungen von U–238 verhältnismäßig groß sind. Im Innern befindet sich hochangereichertes Uran (etwa 90% U–235), umgeben von einem inneren und einem äußeren Brutmantel aus Natururan.

11.6. Moderatoren, Kühlmittel und Reaktorwerkstoffe

Aufgabe des Moderators ist, die bei der Kernspaltung auftretenden hochenergetischen Neutronen möglichst ohne Verluste abzubremsen. Wie Abb. (11–12) zeigt, ist der Wirkungsquerschnitt σ_f der Spaltung des U–235 für schnelle Neutronen um etwa zwei Größenordnungen kleiner als für langsame Neutronen. Deshalb ist ein Moderator notwendig, um die Kettenreaktion in Gang zu halten. Der Bremsvorgang beruht auf den elastischen Zusammenstößen zwischen den Neutronen und den Atomen des Moderators. Die bei einem Stoß abgegebene Energie ist um so größer, je leichter das gestoßene Atom ist (vgl. Abschn. 8.3.). Die Neutronenabsorption verschiedener Moderatoren ist in Tab. 11.10. angegeben. „Leichtes" Wasser ist wegen der verhältnismäßig hohen Neutronenabsorption der Protonen nur in Verbindung mit angereichertem Uran verwendbar. „Schweres" Wasser ist als Moderator und Reflektor ausgezeichnet geeignet, aber verhältnis-

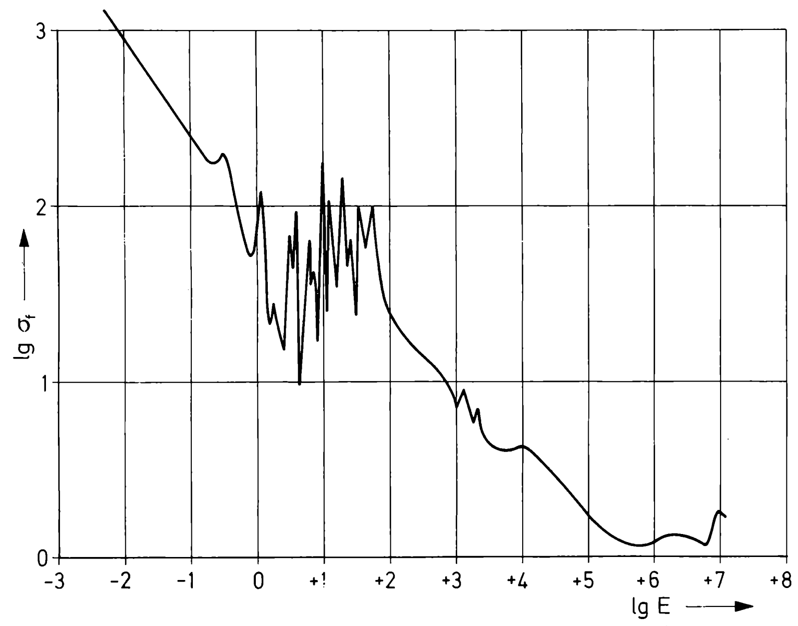


Abb. (11–12) Wirkungsquerschnitt σ_f für die Spaltung von U–235 (σ_f in barn, Neutronenenergie E in eV). Nach D. J. HUGHES u. J. A. HARVEY: BNL, Neutron Cross Sections, United States Atomic Energy Commission. McGraw-Hill Book Comp., New York 1955.

mäßig teuer. Beryllium ist ebenfalls gut geeignet, aber schwieriger in reiner Form darzustellen als Graphit. Deshalb wird Graphit in den meisten Fällen bevorzugt.

Von der Wahl des Kühlmittels hängt wegen des Neutronenhaushaltes auch die Art des Brennstoffes ab. Bei Verwendung von Uran natürlicher Isotopenzusammensetzung (Natururan) kommen nur solche Kühlmittel in Frage, die eine schwache Neutronenabsorption aufweisen, z. B. Luft, Wasserstoff, Helium, Stickstoff, Kohlendioxid und schweres Wasser. Flüssige Metalle besitzen eine hohe Neutronenabsorption (vgl. Tab. 11.10.) und bedingen deshalb die Verwendung von angereichertem Uran oder Plutonium als Brennstoff. Bei Leistungsreaktoren wird vor allen Dingen eine gute Wärmeübertragung gefordert. Für thermische Reaktoren ist es erwünscht, daß auch das Kühlmittel als Moderator wirkt, für schnelle Reaktoren nicht.

Die Nachteile des Wassers als Kühlmittel sind der niedrige Siedepunkt und die Korrosionsgefahr. Für Hochtemperaturreaktoren werden Gase bevorzugt. Das Verhältnis der abgeführten Wärme zur Pumpleistung ist proportional $M^2 \cdot c_p^3$ (M = Molekulargewicht, c_p = spezifische Wärme). Im Hinblick darauf wäre Wasserstoff am vorteil-

Tabelle 11.10.
Eigenschaften verschiedener Moderatoren und Kühlmittel

	Einfangquerschnitt für therm. Neutronen σ_a in barn	Dichte ρ bei 20 °C in g cm^{-3}	Schmp. in °C	Sdp. in °C	Wärmeleitfähigkeit bei 20 °C in cal cm^{-1} grad^{-1}	Spez. Wärme c_p bei 20 °C in cal g^{-1} grad^{-1}
Graphit	0,0034	2,25	Sublimiert	3650	$\approx$ 0,4	0,172 (25 °C)
D_2O	0,0011	1,105	3,8	101,42	0,0014	1,006
H_2O	0,66	0,998	0	100,0	0,0014	0,999
CO_2	0,0038	$1{,}977 \cdot 10^{-3}$	Sublimiert	−78,5	0,00017 (30 °C)	0,199 (15 °C)
Na	0,53	0,928 (100 °C)	97,7	883	0,206 (100 °C)	0,331 (100 °C)

haftesten; wegen der Explosionsgefahr scheidet er aber aus. Helium ist zu teuer. Für Graphit-moderierte Reaktoren ist Kohlendioxid geeignet; jedoch findet bei höherer Temperatur unter dem Einfluß der Strahlung ein Transport von Graphit statt. Flüssige Metalle (z. B. Natrium, Natrium/Kalium-Legierungen, Li–7, Quecksilber) besitzen gute Wärmeleitfähigkeit und hohe spezifische Wärme. Ihre sichere Handhabung ist aber nicht einfach; außerdem ist die Korrosionsgefahr groß.

An die Werkstoffe, die im Inneren eines Reaktors Verwendung finden, werden folgende Anforderungen gestellt: möglichst niedrige Neutronenabsorption, möglichst geringe Aktivierung, keine Änderung der Eigenschaften unter dem Einfluß der Neutronen- und der γ-Strahlung im Reaktor, Korrosionsbeständigkeit und gute mechanische Eigenschaften. Diese Anforderungen werden am besten von Zirkonium erfüllt, das als Reaktorwerkstoff große technische Bedeutung erlangt hat. Daneben sind auch Aluminium, Beryllium und Magnesium mit gewissen Einschränkungen geeignet. Stahl und andere Schwermetalle sind nur dann verwendbar, wenn man den verhältnismäßig hohen Einfangquerschnitt für Neutronen in Kauf nehmen kann.

11.7 Chemische Vorgänge in Kernreaktoren

Die Untersuchung der chemischen Vorgänge in Kernreaktoren ist das engere Arbeitsgebiet der Reaktorchemie. Die Vorgänge lassen sich in drei Gruppen unterteilen:

Vorgänge, an denen die Spaltprodukte beteiligt sind;
Vorgänge unter dem Einfluß der Neutronen;
Vorgänge unter dem Einfluß der γ- und β-Strahlung.

Die Eigenschaften und die Reichweiten typischer Spaltbruchstücke sind in Tab. 11.11. aufgeführt. Da die Reichweite sehr gering, die spezifische Ionisation aber sehr hoch ist, erzeugen die Spaltbruchstücke lokal — d. h. längs ihres Weges — sehr hohe Temperaturen, die einige Tausend Grad betragen können. Diese örtlich begrenzten Temperaturstöße erzeugen in den Brennstoffelementen Fehlstellen und bewirken Deformationen, Volumenvergrößerung, Härtezunahme und erhöhte Reaktionsfähigkeit. Die gasförmigen Spaltprodukte wandern im Temperaturgefälle zum Mittelpunkt und erzeugen dort Hohlräume. In homogenen Reaktoren tritt Radikalbildung und Zersetzung ein.

Tabelle 11.11.
Eigenschaften typischer Spaltbruchstücke und ihre Reichweiten in verschiedenen Stoffen

		Leichtes Bruchstück	Schweres Bruchstück
Massenzahl		95	139
Ordnungszahl		38 (Sr)	54 (Xe)
Kinet. Energie in MeV		97	65
Anfangsladung		+20	+ 22
Reichweite in Luft	in μm	25000	19000
Reichweite in Wasser	in μm	≈ 25	
Reichweite in Aluminium	in μm	≈ 10	
Reichweite in U_3O_8	in μm	≈ 9	
Reichweite in UO_2	in μm	≈ 8	
Reichweite in Uran	in μm	≈ 5	
Reichweite in Kupfer	in μm	≈ 4	

Die Neutronen erzeugen in Festkörpern durch elastische und unelastische Streuung an Atomen ebenfalls Fehlstellen und Deformationen, allerdings nicht in so hoher lokaler Konzentration wie die Spaltprodukte. Darüber hinaus finden unter dem Einfluß der Neutronen Kernreaktionen statt, mit thermischen Neutronen vor allen Dingen (n, γ)-Reaktionen. Dabei entstehen Rückstoßatome, deren Wirkung in einem Festkörper oder in einer Lösung ähnlich ist wie die der Spaltprodukte. Der wichtigste Unterschied besteht darin, daß diese Rückstoßkerne erheblich geringere Energie besitzen als die Spaltprodukte (< 1 MeV). Dementsprechend ist auch die lokale Überhitzung geringer. Die bei (n, γ)-Reaktionen auftretenden γ-Quanten tragen zur sekundären γ-Strahlung im Reaktor bei.

Die intensive primäre γ-Strahlung bei der Kernspaltung und die sekundäre γ-Strahlung beim γ-Zerfall der Spaltprodukte sowie bei (n, γ)-Reaktionen bewirken zusammen mit der β^--Strahlung der Spaltprodukte eine Reihe von strahlenchemischen Reaktionen. Am wichtigsten ist die strahlenchemische Zersetzung des Wassers in homogenen und heterogenen Reaktoren, in denen Wasser als Moderator oder Kühlmittel dient. Sie führt zur Bildung von Wasserstoff, Wasserstoffperoxid und Sauerstoff (vgl. Abschn. 10.5.). In geschlossenen Reaktoren, die Wasser enthalten, ist deshalb meist eine Anlage zur Rekombination von Wasserstoff und Sauerstoff eingebaut, um die Bildung größerer Mengen Knallgas zu vermeiden. In Wasser gelöste Stoffe haben einen großen Einfluß auf die Menge der Radiolyseprodukte (Abb. (11–13)).

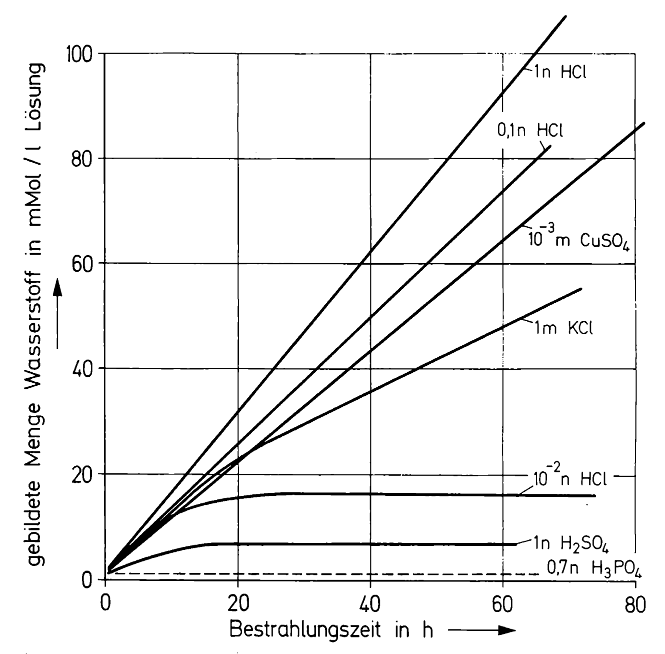


Abb. (11–13) Einfluß gelöster Stoffe auf die Bildung von Wasserstoff durch Radiolyse. Nach J. K. Dawson u. R. G. Sowden: Chemical Aspects of Nuclear Reactors. Vol. 2: Water-Cooled Reactors. Butterworth, London 1963.

In Reaktoren, die organische Verbindungen als Moderatoren enthalten (Orgel-Projekt), wirft die Radiolyse des organischen Moderators große Probleme auf. Durch Radikalbildung und Folgereaktionen entstehen auch in aromatischen Verbindungen, die verhältnismäßig strahlenresistent sind (z. B. Terphenyl), im Laufe der Zeit größere Mengen an zum Teil hochmolekularen Produkten, die sich an unerwünschten Stellen absetzen.

11.8. Wiederaufarbeitung der Brennstoffelemente

Die Wirkung der Spaltprodukte im Reaktor läßt sich in den beiden folgenden Punkten zusammenfassen:

a) Strahlenschäden in den Brennstoffelementen (anomale Ausdehnung, Volumenvergrößerung); sie werden verstärkt durch die Strahlenschäden, die von den Neutronen und der γ-Strahlung hervorgerufen werden. Man versucht, diesen Strahlenschäden durch Auswahl geeigneter Brennstoffelemente vorzubeugen.
b) Vergiftung des Reaktors durch die Neutronen-absorbierenden Spaltprodukte. Der Umfang dieser Vergiftung kann aus den Spalt-

ausbeuten und den Einfangquerschnitten der Radionuklide sowie dem Abbrand der Brennstoffelemente berechnet werden.

Ein interessantes Beispiel zur Erläuterung der Vergiftung ist die Isobarenreihe mit der Massenzahl A = 135:

$$\begin{array}{ccccccccc}
\mathrm{U(n,f)}\,{}^{135}\mathrm{Te} & \xrightarrow[2\,\mathrm{min}]{\beta^-} & {}^{135}\mathrm{J} & \xrightarrow[6{,}7\,\mathrm{h}]{\beta^-} & {}^{135}\mathrm{Xe} & \xrightarrow[9{,}2\,\mathrm{h}]{\beta^-} & {}^{135}\mathrm{Cs} & \xrightarrow[3\cdot 10^{6}\,\mathrm{a}]{\beta^-} & {}^{135}\mathrm{Ba\ (stabil)} \\
\downarrow (\mathrm{n},\gamma) & & \downarrow (\mathrm{n},\gamma) & & \downarrow (\mathrm{n},\gamma)\ \sigma = 2{,}7\cdot 10^{6}\,\mathrm{b} & & \downarrow (\mathrm{n},\gamma)\ \sigma = 8{,}7\,\mathrm{b} & & \downarrow (\mathrm{n},\gamma)\ \sigma = 5\,\mathrm{b} \\
{}^{136}\mathrm{Te} & & {}^{136}\mathrm{J} & & {}^{136}\mathrm{Xe} & & {}^{136}\mathrm{Cs} & & {}^{136}\mathrm{Ba}
\end{array} \tag{11.17}$$

Das Verhältnis der Zahl der durch β-Umwandlung zerfallenden Atome zu der durch (n, γ)-Reaktionen umgewandelten Atome hängt vom Neutronenfluß ab:

$$\left(\frac{\mathrm{d}N}{\mathrm{d}t}\right)_{\beta} \Big/ \left(\frac{\mathrm{d}N}{\mathrm{d}t}\right)_{\mathrm{n},\gamma} = N\lambda/N\sigma\phi = \lambda/\sigma\phi. \tag{11.18}$$

So werden beispielsweise bei einem Neutronenfluß $\Phi = 10^{12}\,\mathrm{cm^{-2}\,s^{-1}}$ 11% des Xe–135 in Xe–136 umgewandelt, bei einem Neutronenfluß $\Phi = 10^{14}\,\mathrm{cm^{-2}\,s^{-1}}$ jedoch 93%. Die Vergiftung führt dazu, daß in thermischen Reaktoren der Neutronenhaushalt immer schlechter wird, so daß die Brennstoffelemente nach einem bestimmten Abbrand (20 bis 80%) ausgewechselt werden müssen. In schnellen Reaktoren macht sich die Vergiftung weniger bemerkbar, weil die schnellen Neutronen in sehr viel geringerem Umfang absorbiert werden.

Als Gegenmaßnahmen im Hinblick auf die Vergiftung kommen folgende Möglichkeiten in Frage:

a) Verwendung einer Überschußreaktivität (vgl. Abschn. 11.1.).
b) Einbau eines Brutmantels (z. B. Th–232), damit die abnehmende Reaktivität durch den im Brutprozeß neu erzeugten Kernbrennstoff kompensiert wird.

Die Ausbeute an verschiedenen langlebigen Spaltprodukten bei der Kernspaltung des Urans mit thermischen Neutronen ist in Tab. 11.12. angegeben (vgl. dazu Abb. (8–13) bzw. (8–14)). In Tab. 11.13. sind die langlebigen Spaltprodukte in Stoffgruppen zusammengefaßt. Mengenmäßig machen die Lanthaniden den Hauptanteil aus (70%). Dann

Tabelle 11.12.
Spaltausbeute an verschiedenen langlebigen Spaltprodukten bei der Kernspaltung des Urans durch thermische Neutronen

Spaltprodukt	Spaltausbeute in %	Halbwertzeit $t_{1/2}$
Sr–89	4,8	52 d
Sr–90	5,8	28,1 a
Tc–99 (Mo–99)	6,3	$2,1 \cdot 10^5$ a (67 h)
Ru–103	2,9	40 d
Te–129 (J–129)	1,0	69 min ($1,7 \cdot 10^7$ a)
J–131	2,9	8,05 d
Xe–133	6,5	5,3 d
Cs–137	6,0	30 a
Ba–140	6,4	12,8 d
Ce–143 (Pr–143)	5,9	33 h (13,6 d)
Ce–144 (Pr–144)	5,6	284 d (17,3 min)
Sm–147	2,6	$1,05 \cdot 10^{11}$ a

Tabelle 11.13.
Die wichtigsten langlebigen Spaltprodukte

Element	Relative Häufigkeit in den Spaltprodukten in %	Relative Neutronen-absorption in %
Edelgase	7	72
Samarium	70 (Samarium und andere Lanthanide)	14
andere Lanthanide		11
Technetium	10	1
Cäsium	4	0,5
Molybdän	1	0,2
Rest	8	1,3

folgen das Technetium (10%), die Edelgase (7%) und das Cäsium (4%). Als Neutronengifte stehen die Edelgase an erster Stelle; dies ist vor allem durch den hohen Einfangquerschnitt des Xe–135 bedingt ($\sigma_a = 2,7 \cdot 10^6$b). Es folgen das Sm–149 ($\sigma_a = 4,15 \cdot 10^4$b) und andere Lanthaniden. Die restlichen Elemente spielen als Neutronengifte nur eine untergeordnete Rolle.

Die außerordentlich hohe Radioaktivität der Spaltprodukte bestimmt in hohem Umfang die Verfahren der Wiederaufarbeitung. Nach den Ausführungen in Abschnitt 11.1. entspricht in einem Kernreaktor eine thermische Leistung von

$$1\,\mathrm{MW} = 10^{13}\,\mathrm{erg\,s^{-1}} = \frac{10^{13}}{1{,}60 \cdot 10^{-6}} = 6{,}25 \cdot 10^{18}\,\mathrm{MeV\,s^{-1}}$$

einer Zahl von $\frac{6{,}25 \cdot 10^{18}}{189} \approx 3{,}3 \cdot 10^{16}$ Kernspaltungen pro Sekunde. Die bei einer Kernspaltung entstehenden kurzlebigen Spaltprodukte erleiden im Mittel etwa 5 radioaktive Umwandlungen pro Sekunde. Einer Leistung von 1 MW entspricht somit eine Zerfallsrate von $5 \cdot 3{,}3 \cdot 10^{16} \approx 17 \cdot 10^{16}$ tps bzw. eine Aktivität von $\approx 5 \cdot 10^{6}$ Ci. Diese Aktivität fällt nach dem Abschalten des Reaktors sehr rasch ab; der Aktivitätsabfall ist in Abb. (11–14) aufgezeichnet. Die radioaktive Strahlung der Spaltprodukte führt zu einer Wärmeentwicklung in den Brennstoffelementen, die ebenfalls in Abb. (11–14) angegeben ist. Diese Wärmeentwicklung kann unter Umständen zum Schmelzen der Brennstoffelemente führen, wenn sie nicht gekühlt werden.

Für die Dauer der Lagerung sind neben dem in Abb. (11–14) aufgezeichneten Aktivitätsabfall auch die nachstehenden Reaktionsfolgen von Bedeutung:

$$^{235}\mathrm{U}(\mathrm{n},\gamma)^{236}\mathrm{U}(\mathrm{n},\gamma)^{237}\mathrm{U} \xrightarrow[6{,}75\,\mathrm{d}]{\beta^-,\,\gamma} {}^{237}\mathrm{Np}$$

bzw. (11.19)

$$^{238}\mathrm{U}(\mathrm{n},2\mathrm{n})^{237}\mathrm{U} \xrightarrow[6{,}75\,\mathrm{d}]{\beta^-,\,\gamma} {}^{237}\mathrm{Np}.$$

Das U–237 bewirkt eine verhältnismäßig hohe Aktivität des Urans, wenn die Lagerungszeit kleiner ist als etwa 100 Tage.

Die Wiederaufarbeitung der Brennstoffelemente richtet sich nach der Art des Brennstoffs und der Ausführungsform der Brennstoffelemente; sie läßt sich in zwei Teilschritte aufteilen:

a) Zerlegung der Brennstoffelemente und Zerkleinerung,
b) chemische Aufarbeitung des Brennstoffs.

Der erste Teilschritt wird als „head end"-Verfahren bezeichnet. Dabei kann eine mechanische oder chemische Trennung von Brennstoff und Ummantelung (Hülse) erfolgen. Für die mechanische Trennung

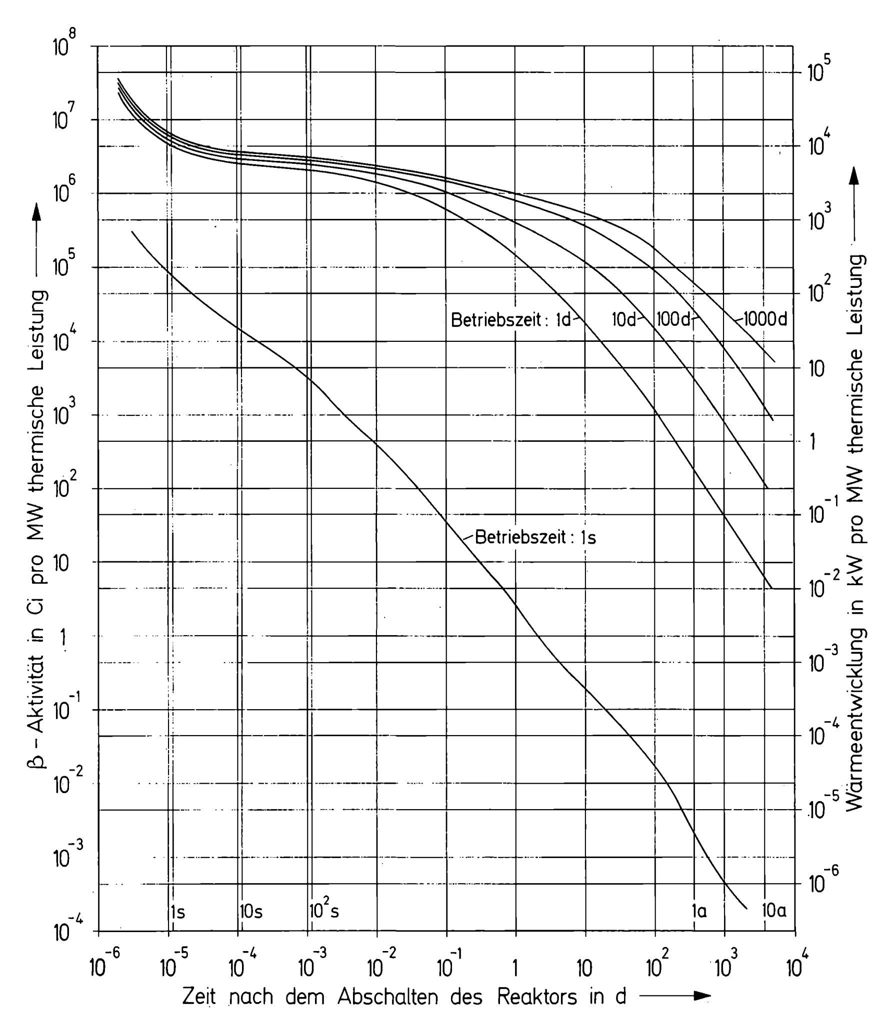


Abb. (11–14) Aktivitätsabfall der Spaltprodukte nach dem Abschalten eines Reaktors (aufgetragen ist der Abfall der β-Aktivität; die γ-Aktivität ist etwa halb so groß. Die Wärmeentwicklung ist für eine mittlere Energie der β-Strahlung von 0,4 MeV und vollständige Absorption der Strahlung berechnet).

müssen spezielle Maschinen entwickelt werden, mit denen dann im allgemeinen nur ein bestimmter Typ eines Brennstoffelements zerlegt werden kann. Diese Zerlegungsmaschinen werden in großen heißen Zellen aufgestellt. Eine mechanische Trennung von Brennstoff und Hülse ist nicht möglich, wenn diese Teile miteinander verlötet sind oder wenn es sich um Matrixelemente handelt. Die Zerkleinerung des Brennstoffs wird meist direkt im Anschluß an die mechanische Zerlegung der Brennstoffelemente vorgenommen. Das chemische „head

end"-Verfahren kann in einer Auflösung der Hülse unter Zurücklassung des Brennstoffs bestehen, oder die Trennung kann in der Weise erfolgen, daß der Brennstoff nach der Zerkleinerung der Brennstoffelemente aus der Hülse herausgelöst wird („chop leach"-Verfahren); dieses Verfahren ist besonders vorteilhaft.

Für die Auflösung von Aluminiumhülsen wird 5 m Natronlauge oder 6 m Schwefelsäure verwendet; in letzterem Falle ist der Zusatz von Quecksilbersalz als Katalysator erforderlich. Magnesium und Magnox (Magnesium-Aluminiumlegierung) werden in Salpetersäure oder Schwefelsäure aufgelöst, Edelstahl in siedender 6 m Schwefelsäure (Sulfex-Prozeß) oder in einem Gemisch von verdünnter Salpetersäure und Salzsäure (Darex-Prozeß). Für die Auflösung von Zirkonium und Zircaloy (Zirkoniumlegierung mit kleinen Zusätzen an Zinn, Eisen, Chrom und Nickel) ist eine siedende Lösung geeignet, die 5,5 Mol/l Ammoniumfluorid und 0,5 Mol/l Ammoniumnitrat enthält (Zirflex-Verfahren). Für die Auflösung des Urans — entweder nach vorausgehender mechanischer Trennung von Brennstoff und Hülse oder im „chop leach"-Verfahren — dient meist 11 m Salpetersäure, für die Auflösung von Urandioxid 7,5 m Salpetersäure.

Als chemische Aufarbeitungsverfahren für den Brennstoff kommen wässerige und nicht-wässerige Verfahren in Frage. Bei den wässerigen Aufarbeitungsverfahren geht man von den Lösungen aus, die bei der Auflösung des Brennstoffs — z. B. in Salpetersäure — erhalten werden. Man unterscheidet Fällungs-, Ionenaustausch- und Extraktionsverfahren. Nicht-wässerige Verfahren befinden sich im Stadium der Voruntersuchung und der Entwicklung. Hierbei wird der Brennstoff — ohne vorausgehende Auflösung — aufgeschlossen und weiterverarbeitet. Man unterscheidet Halogenierungsverfahren, Schmelzverfahren und pyrometallurgische Verfahren. In jedem Falle besteht die Aufgabe der Wiederaufarbeitung darin, eine möglichst weitgehende Trennung Uran/Plutonium/Spaltprodukte zu erreichen.

Das älteste Verfahren der Wiederaufarbeitung ist der Wismutphosphat-Prozeß, ein Fällungsverfahren, das hauptsächlich zur Plutoniumgewinnung diente. Die wichtigsten Schritte sind in dem folgenden Schema zusammengefaßt (S.P. steht als Abkürzung für Spaltprodukte):

Auflösung in HNO_3

↓

$UO_2(NO_3)_2$, $PuO_2(NO_3)_2$ + Nitrate der S.P.

↓ $NaNO_2$, SO_4^{--}

$UO_2(SO_4)_2^{--}$, $Pu(NO_3)_4$ + Nitrate der S.P.

| Bi^{3+}, dann Phosphat

↙ ↘

$BiPO_4$ + Phosphate des Pu^{IV} — Uran + S.P.

↓ HNO_3, 2 mal Wiederholung der Wismutphosphatfällung

$BiPO_4$ + Phosphate des Pu^{IV}

| HNO_3, MnO_4^- bzw. $Cr_2O_7^{--}$ als Oxydationsmittel für Pu, Zr^{4+} als Träger für Ionen der Oxydationsstufe IV Wismutphosphatfällung

↙ ↘

$BiPO_4$ + Phosphate des Zr und anderer Elemente der Oxydationsstufe IV — Pu^{VI} gelöst

↓ Fe^{II} zur Reduktion des Pu^{VI}, SiF_6^{2-} zur Komplexbindung des Zr, Wismutphosphatfällung

$BiPO_4$ + Phosphate des Pu^{IV} (ohne Zr)

↓ HNO_3, Lanthanfluoridfällung

LaF_3 + PuF_4

↓ Aufschluß mit KOH, Überführung in Nitrate, Peroxidzusatz

Plutoniumperoxid (La bleibt in Lösung)
Ausbeute an Pu > 95%
Dekontaminierung von S. P. $\approx 10^7$

Das Wismutphosphat-Verfahren ist in der Technik durch Extraktionsverfahren verdrängt.

Ionenaustauschverfahren haben für die großtechnische Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen keine Anwendung gefunden, weil Harzaustauscher gegen die Einwirkung der Strahlung der hochradioaktiven Lösungen zu empfindlich sind und außerdem in den Säulen durch die Radiolyse des Wassers eine Gasentwicklung auftritt, welche die Trennung stört.

Die Anwendung von Extraktionsverfahren in der Kerntechnik zur Gewinnung von reinem Uran (vgl. Abschn. 11.3.) und zur Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen hat die Entwicklung der Extraktionsverfahren entscheidend gefördert. Zunächst benutzte man hauptsächlich Extraktionskolonnen (pulsierende Kolonnen); diese wurden inzwischen weitgehend von Mischer-Abscheider-Batterien („mixer settler") verdrängt. Neuere Entwicklungen sind Zentrifugal- und Hydrozyklonextraktoren.

Tabelle 11.14.
Extraktionsmittel für die großtechnische Wiederaufarbeitung von Kernbrennstoffen

Verfahren	Extraktionsmittel	Formel	angewendet in
Purex	Tri-n-butylphosphat	$O{=}P(-OC_4H_9)_3$	USA
Redox	Methyl-isobutyl-keton (Hexon)	$CH_3-CO-C_4H_9$	USA
Butex	Dibutylcarbitol	$C_4H_9-O-C_2H_4-O-C_2H_4-O-C_4H_9$	England
Eurex	Trilaurylamin	$N(-(CH_2)_{11}CH_3)_3$	Italien

Als Extraktionsmittel werden organische Verbindungen verwendet: Phosphorsäureester, Ketone, Äther und langkettige Amine. Tabelle 11.14. bringt eine Übersicht über die Extraktionsmittel, die in verschiedenen großtechnischen Verfahren benutzt werden.

Die wichtigsten Schritte der Extraktionsverfahren sind:

a) Extraktion von U^{VI} und Pu^{VI} in die organische Phase; damit wird der Großteil der Spaltprodukte abgetrennt.
b) Reduktion des Pu^{VI} zu Pu^{IV} bzw. Pu^{III} und Trennung des Plutoniums vom Uran.

c) Reinigung des Urans bzw. Plutoniums als U^{VI} bzw. Pu^{VI} und Rückextraktion dieser Elemente in die wässerige Phase.

Das in England gebräuchliche Butex-Verfahren ist schematisch in Abb. (11–15) aufgezeichnet. Die anderen Verfahren verlaufen ähnlich.

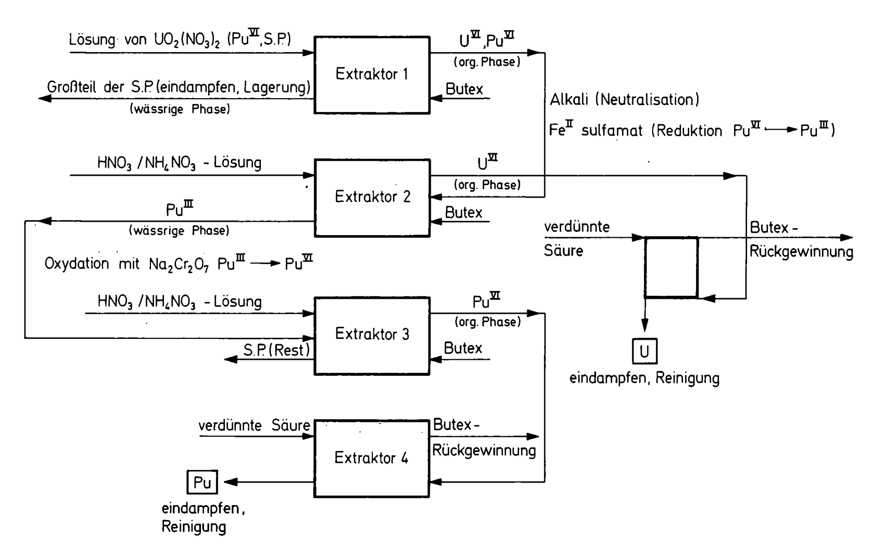


Abb. (11–15) Schema des Butex-Prozesses.

Die Halogenierungsverfahren beruhen auf der Bildung flüchtiger Uranverbindungen durch Fluorierung oder Chlorierung. Als Fluorierungsmittel sind Bromtrifluorid und Chlortrifluorid am besten geeignet:

$$U + 2\,ClF_3 \longrightarrow UF_6 + Cl_2. \tag{11.20}$$

Das Kernproblem der Fluorierungsverfahren ist die Trennung von Uran und Plutonium. Plutonium ist in Anwesenheit von Fluor bei höherer Temperatur als PuF_6 ebenfalls flüchtig. Da sich aber stets das Dissoziationsgleichgewicht

$$PuF_6 \rightleftharpoons PuF_4 + F_2 \tag{11.21}$$

einstellt, stößt die quantitative Abtrennung des Plutoniums auf Schwierigkeiten. Durch Behandlung der Kernbrennstoffe mit Chlor können die Tetrachloride des Urans und des Plutoniums (UCl_4 bzw. $PuCl_4$) gewonnen werden, die bei höherer Temperatur ebenfalls flüchtig sind.

Als Schmelzverfahren kommen der Bisulfataufschluß oder der alkalische Aufschluß (evtl. unter Zusatz von Peroxid zur Zerstörung von Graphit oder Siliciumcarbid) in Frage, ferner die Behandlung in einer Salzschmelze, z. B. die Fluorierung Zirkonium-haltiger Brennstoffe in einer Schmelze von $NaF/LiF/ZrF_4$. Technisch interessant sind Extraktionsverfahren in Salzschmelzen; die Entwicklung solcher Verfahren steht jedoch noch aus.

Pyrometallurgische Verfahren können im einfachsten Falle darin bestehen, daß der Kernbrennstoff auf hohe Temperatur erhitzt wird. Dabei werden flüchtige Spaltprodukte, vor allen Dingen die Edelgase, aber auch Jod, Cäsium und andere Elemente ausgetrieben. Durch diese Hochtemperaturbehandlung erreicht man eine beträchtliche „Entgiftung", wie ein Blick auf Tab. 11.13. zeigt. Die Entgiftung kann durch partielle Oxydation erheblich verbessert werden; die Oxide der Seltenen Erden und andere Oxide werden dabei in Form von Schlakken abgeführt. Mit Graphit beschichtete Teilchen („coated particles") können durch Erhitzen an der Luft von der schützenden Graphitschicht befreit werden, die zu Kohlendioxid verbrennt. Andere pyrometallurgische Verfahren, die sich ebenfalls im Stadium der Entwicklung befinden, haben die Abtrennung der Spaltprodukte durch Extraktion oder Umsetzung mit flüssigen Metallen zum Ziel.

11.9. Weiterverarbeitung und Lagerung der Spaltprodukte

Die hochradioaktiven Spaltprodukte werden zunächst in der Nähe der Wiederaufarbeitungsanlagen gesammelt. Daneben entstehen auch größere Mengen an Abfällen mittlerer Aktivität, z. B. durch Zerlegung der Brennstoffelemente. Die radioaktiven Abfälle werden im angelsächsischen als „waste" bezeichnet.

Nach der Wiederaufarbeitung der Brennstoffelemente durch Extraktionsverfahren liegen die Spaltprodukte in Form stark saurer Lösungen vor, z. B. in 3 m Salpetersäure. In den USA beträgt der Vorrat an hochradioaktiven Spaltproduktlösungen zur Zeit etwa 300000 m^3, die auf ungefähr 200 Tanklager verteilt sind. Gegen Ende dieses Jahrhunderts wird auf der Erde eine Jahresproduktion von etwa 1 Million m^3 hochradioaktiver Spaltproduktlösungen durch Wiederaufarbeitung der Kernbrennstoffe aus Kernkraftwerken erwartet.

Die Anfangsaktivität der Spaltproduktlösungen ist von der Größenordnung 1 kCi/l Lösung. Nach Ablauf von 10 Jahren sind die kurzlebigeren Radionuklide weitgehend abgeklungen; der weitere Aktivitätsabfall wird durch die langlebigen Radionuklide, insbesondere Sr–90 und Cs–137, bestimmt, deren Aktivität insgesamt etwa 100 Ci/l Lösung beträgt. Die Aktivität dieser Radionuklide nimmt entsprechend ihrer Halbwertzeit (28 bzw. 30 a) sehr langsam ab; sie beträgt nach einer Lagerungszeit von 1000 Jahren noch etwa 10^{-2} μCi/l Lösung. Nach dieser Zeit treten die sehr langlebigen Spaltprodukte (z. B. Tc–99 und J–129) in den Vordergrund.

Die hohe Anfangsaktivität bewirkt eine starke Erwärmung und Radiolyse der Lösungen. Wenn man diese Lösungen sich selbst überläßt, dampfen sie von selbst ein, wobei lebhafte Korrosion eintritt; außerdem bilden sich nitrose Gase, gasförmige Spaltprodukte und durch Radiolyse des Wassers größere Mengen an Knallgas. Deshalb müssen bei der Lagerung der Spaltproduktlösungen umfangreiche Sicherheitsvorkehrungen getroffen werden. Diese bestehen vor allen Dingen in einer Kühlung der Lösung, Überwachung der Korrosionsvorgänge sowie Kontrolle und Filterung der Luft.

Ziel der Weiterverarbeitung der Spaltproduktlösungen ist die Überführung in einen möglichst stabilen Zustand, der sich für eine langfristige Lagerung eignet. Gleichzeitig soll das Volumen reduziert und nicht durch Zugabe größerer Mengen inaktiver Stoffe vergrößert werden. Am wichtigsten sind solche Verfahren, bei denen die Spaltproduktlösungen in beständige keramische Verbindungen oder Gläser überführt werden („calcination“ bzw. „vitrification“). Eine Möglichkeit der Calcinierung besteht darin, die Lösungen, die größere Mengen Aluminiumnitrat enthalten (durch Auflösung der Aluminiumhülse), direkt in einem Ofen zu versprühen; die entstehenden Oxidgemische werden allerdings verhältnismäßig leicht ausgelaugt. Durch Zusatz von Silicaten oder Kieselsäure können die Eigenschaften der Calcinierungsprodukte verbessert werden. Verhältnismäßig große Vorteile bietet die Herstellung von Gläsern, z. B. Borosilikatgläsern (vgl. Boraxperle) oder Phosphatgläsern (vgl. Phosphorsalzperle), die bis zu 40% Oxide der Spaltprodukte aufnehmen können. Auch hier wird nach Zugabe der erforderlichen Komponenten die direkte Herstellung der Gläser aus den Spaltproduktlösungen durch Versprühen in einem Ofen bevorzugt; das flüssige Glas wird in Töpfen aus Stahlblech aufgefangen.

Die Wärmeproduktion in den keramischen Verbindungen bzw.

Gläsern ist verhältnismäßig hoch, insbesondere dann, wenn die Konzentration an Spaltprodukten groß ist. Diese Wärmeproduktion kann z. B. für Heizungszwecke nutzbar gemacht werden.

Für die Lagerung der in beständige Verbindungen übergeführten Spaltprodukte kommen wegen des Strahlenschutzes vor allen Dingen unterirdische Lagerstätten in Betracht. Besonders geeignet sind Stollen in Salzbergwerken, weil die Salzlagerstätten für Wasser bzw. Lösungen verhältnismäßig undurchlässig sind. Da die Lagerungszeit auf Grund der vorausgehenden Überlegungen recht groß ist (Größenordnung einige Hundert Jahre), erscheint es zweckmäßig, solche Lagerstätten nicht abzuschließen, sondern für Kontrollen und Überwachungsmaßnahmen zugänglich zu halten. Bei allen Überlegungen dieser Art stehen die auf lange Zeiträume abgestimmten Sicherheitsfragen im Vordergrund. Im Zusammenhang mit der Überführung der Spaltprodukte in die Lagerstätten sind auch die Fragen des Transports wegen der erforderlichen Strahlenschutzmaßnahmen von großer Bedeutung.

Die Verfahren zur Abtrennung bestimmter Spaltprodukte spielen bei der Weiterverarbeitung des hochradioaktiven Abfalls aus den Wiederaufarbeitungsanlagen eine immer größere Rolle. Einige dieser Spaltprodukte besitzen heute bereits praktische Bedeutung, z. B. Sr–90 für die Verwendung in Isotopenbatterien, die zur Energiegewinnung dienen (vgl. Abschn. 15.9.). An anderen Spaltprodukten besteht ebenfalls Interesse. So entstehen bei der Kernspaltung größere Mengen der recht seltenen Elemente Ruthenium und Rhodium. Technetium, das in der Natur nicht vorkommt, ist unter den Spaltprodukten in verhältnismäßig hoher Konzentration vertreten. Langlebige Radionuklide, wie J–129, sind wegen ihrer niedrigen Radiotoxizität für die Verwendung in der Medizin von Interesse. Besondere Bedeutung besitzen das Np–237 und die Transplutoniumelemente, die durch mehrfachen Neutroneneinfang bei langer Bestrahlungszeit aus Uran und Plutonium entstehen. Diese Elemente treten bei der Wiederaufarbeitung der Kernbrennstoffe meist in den Spaltproduktlösungen auf, wenn der Trennungsgang nicht modifiziert wird. Das Np–237 entsteht nach den Reaktionsgleichungen (11.19) aus Uran. Seine Menge beträgt etwa 0,3% des Plutoniums. Nach der Abtrennung kann durch Bestrahlung im Reaktor das für den Betrieb von Isotopenbatterien interessante Pu–238 hergestellt werden:

$$^{237}\mathrm{Np}\,(\mathrm{n},\gamma)\,^{238}\mathrm{Np} \xrightarrow[2{,}1\,\mathrm{d}]{\beta^-} {}^{238}\mathrm{Pu}. \tag{11.22}$$

Die Transplutoniumelemente entstehen aus Uran bzw. Plutonium nach längerer Bestrahlungszeit (vgl. Tab. 11.15.). Eine Abschätzung zeigt, daß aus den in Betrieb befindlichen und geplanten Kernkraftwerken in der Bundesrepublik im Jahre 1980 voraussichtlich mehrere Tonnen Plutonium und viele kg Transplutoniumelemente — davon etwa 25 kg Curium — zur Verarbeitung anfallen werden.

Die Verfahren zur technischen Abtrennung der langlebigen Spaltprodukte befinden sich im Stadium der Entwicklung. Die Abtrennung dieser langlebigen Spaltprodukte, des Neptuniums und der Transplutoniumelemente bedeutet gleichzeitig eine „Entschärfung“ des hochradioaktiven Abfalls. Die Lagerung und Weiterbehandlung der restlichen Spaltprodukte kann dann wesentlich vereinfacht werden. Auch die Sicherheitsmaßnahmen sind wegen der kürzeren Lagerungszeit erheblich geringer. Zur Zeit ist der Bedarf an langlebigen Spaltprodukten allerdings noch recht gering, so daß der wirtschaftliche Anreiz für ihre Abtrennung fehlt.

11.10. Brutstoffzyklen

Der Zweck eines Brutreaktors ist die Erzeugung von spaltbaren Stoffen aus nicht spaltbaren Stoffen (Brutstoffen). Beim Uran-Plutonium-Zyklus steht die Gewinnung von Pu–239 aus U–238 nach der in Gl. (11.8) angegebenen Reaktionsfolge im Vordergrund, beim Thorium-Uran-Zyklus die Gewinnung von U–233 aus Th–232 nach der Reaktionsfolge (11.9). Der Brutstoff wird entweder mit dem Brennstoff gemischt oder um den Brennstoffkern angeordnet (Brutstoffmantel).

Die für beide Brutstoffzyklen wichtigen Kernreaktionen sind in den Tabn. 11.15. und 11.16. zusammengestellt. Aus U–238 entstehen bei längerer Bestrahlung neben dem Hauptprodukt Pu–239 andere Isotope des Plutoniums und daraus durch β-Zerfall und Neutroneneinfang Americium und Curium. Aus Th–232 entstehen neben dem Hauptprodukt U–233 weitere Uranisotope und außerdem verschiedene Isotope des Protactiniums. Die letzteren zerfallen mit Ausnahme des langlebigen Pa–231 nach einer Lagerungszeit von etwa 1 Jahr in Uranisotope.

Die chemische Aufarbeitung konzentriert sich im Falle des Uran-Plutonium-Zyklus auf die Trennung Uran/Plutonium/Spaltprodukte. Die Nebenaufgabe besteht in der Abtrennung des Neptuniums, Americiums und Curiums. Im Falle des Thorium-Uran-Zyklus besteht die

Tabelle 11.15.
Kernreaktionen bei der Verwendung von U–238 als Brutstoff
(σ in barn für thermische Neutronen)

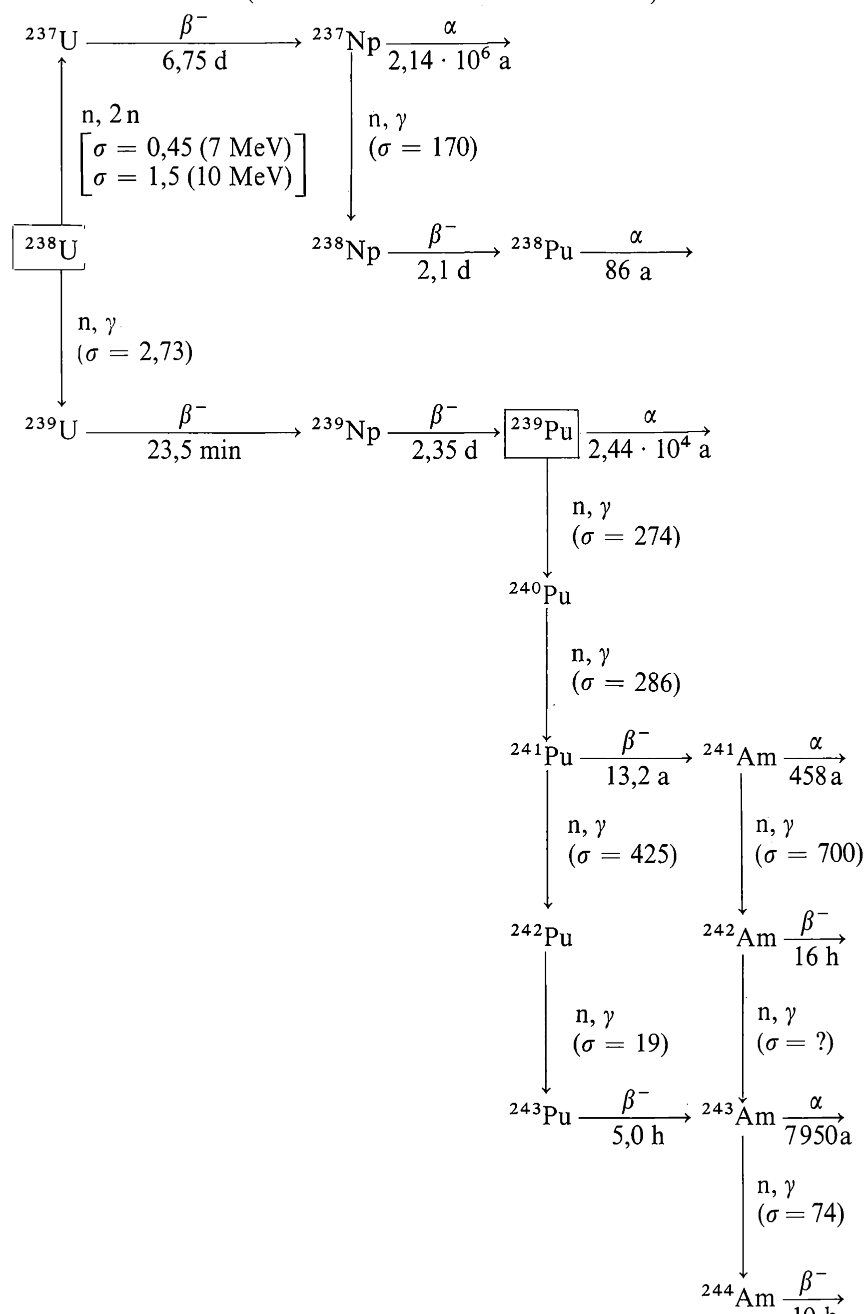
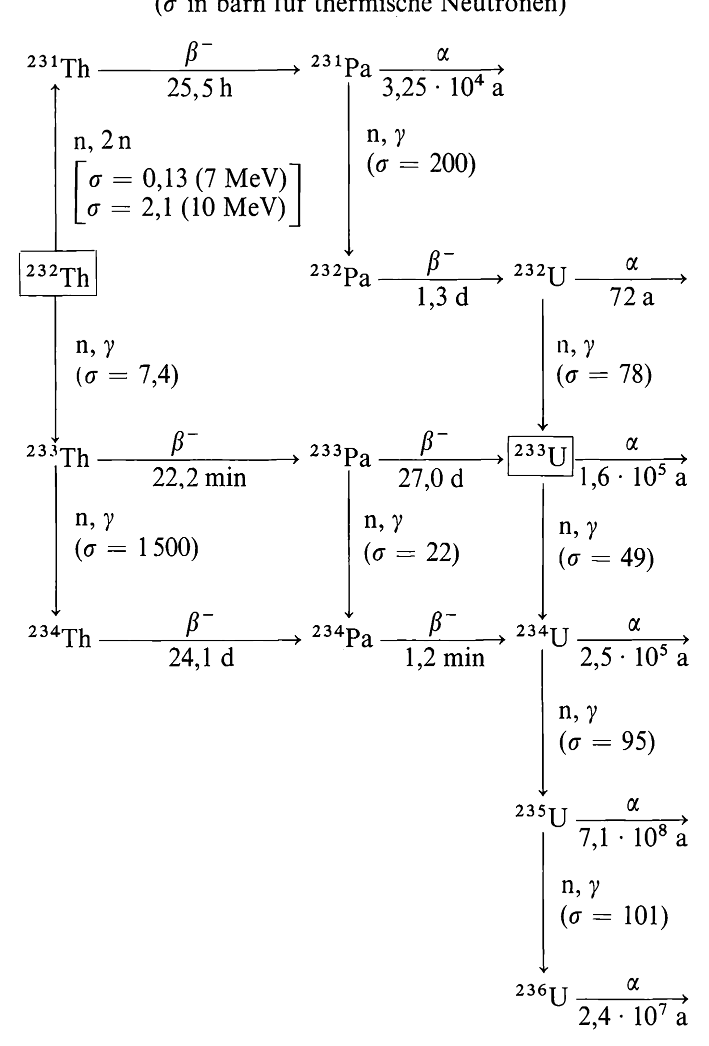


Tabelle 11.16.
Kernreaktionen bei der Verwendung von Th–232 als Brutstoff
(σ in barn für thermische Neutronen)



Hauptaufgabe in der Trennung Thorium/Uran/Spaltprodukte. Außerdem kann die Abtrennung von Pa–231 von Interesse sein. Wenn der Brutstoff Th–232 nicht in getrennter Form (z. B. als Brutstoffmantel), sondern im Gemisch mit U–238 und U–235 eingesetzt wird, ist das durch die Brutreaktion entstandene U–233 mit U–235 bzw. U–238 vermischt. Außerdem muß bei Gegenwart von U–238 auch das entstandene Plutonium abgetrennt werden, gegebenenfalls außerdem Neptunium und die Transplutoniumelemente.

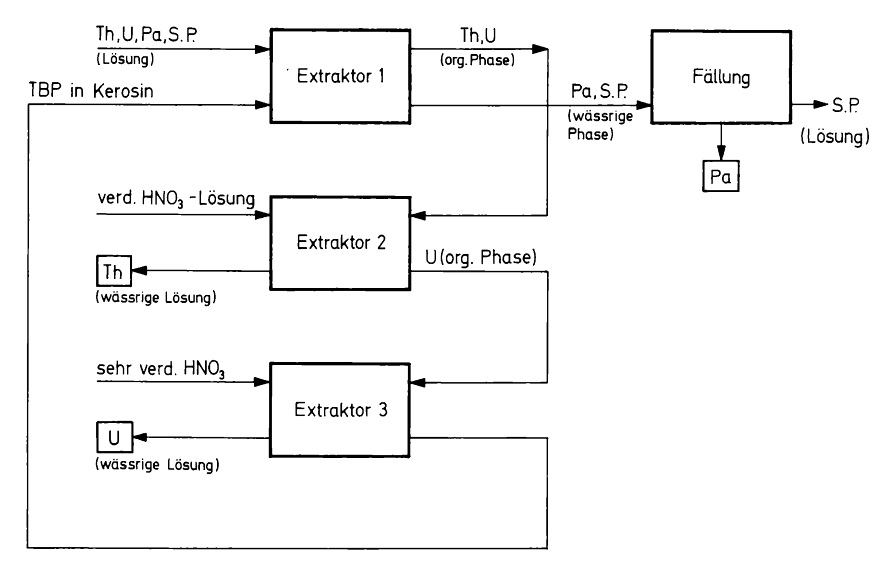


Abb. (11–16) Schema des Thorex-Prozesses.

Für die Trennung Uran/Plutonium/Spaltprodukte kann eines der in Tab. 11.14. aufgeführten großtechnischen Verfahren benutzt werden, z. B. der in Abb. (11–15) schematisch aufgezeichnete Butex-Prozeß. Zur Trennung Thorium/Uran/Spaltprodukte wird in der Großtechnik der Thorex-Prozeß verwendet, der in Abb. (11–16) schematisch wiedergegeben ist. Durch Extraktion mit Tributylphosphat in Kerosin werden Uran und Thorium von den Spaltprodukten und dem Protactinium getrennt. Das Thorium wird aus der organischen Phase mit verdünnter Salpetersäure zurückextrahiert. Das Protactinium kann durch Fällung unter Zusatz eines Trägers aus der wässerigen Phase gewonnen werden.

Literatur zu Kapitel 11

1. W. Riezler, W. Walcher: Kerntechnik. B. G. Teubner Verlagsges., Stuttgart 1958.
2. J. K. Dawson, G. Long: Chemistry of Nuclear Power. Philosophical Library Inc., New York 1959.
3. J. K. Dawson, R. G. Sowdon: Chemical Aspects of Nuclear Reactors. 3 Bde., Butterworths, London 1963.
4. F. R. Bruce, J. M. Fletcher, H. H. Hyman, J. J. Katz: Process Chemistry. Bde. 1, 2 und 3. Aus: Progress in Nuclear Energy, Series III. Pergamon Press, Oxford 1961.

5. J. F. FLAGG: Chemical Processing of Reactor Fuels. Bd. 1. Aus: Nuclear Science and Technology Series. Academic Press, New York 1961.
6. H. ENGEL, K. O. THIELHEIM: Kernenergie-Technik, Verlag Moderne Industrie, München 1960.
7. B. R. T. FROST, M. B. WALDRON: Kerntechnik in Einzeldarstellungen. Bd. VII: Reaktorwerkstoffe. Friedr. Vieweg u. Sohn, Braunschweig 1962.
8. C. B. AMPHLETT: Treatment and Disposal of Radioactive Wastes. Pergamon Press, Oxford 1961.
9. K. SADDINGTON, W. L. TEMPLETON: Disposal of Radioactive Waste. George Newnes, London 1958.
10. Disposal of Radioactive Wastes. Bd. 1 u. 2. International Atomic Energy Agency, Wien 1960.
11. Safety Series Nr. 19. The Management of Radioactive Wastes Produced by Radioisotope Users—Technical Addendum. International Atomic Energy Agency, Wien 1966.
12. C. R. TIPTON: Reactor Handbook. Bd. I: Materials. Interscience Publishers, London 1960;
S. M. STOLLER, R. B. RICHARDS: Reactor Handbook. Bd. II: Fuel Reprocessing. Interscience Publishers, London 1961.

Übungen zu Kapitel 11

1. Bei der Spaltung von Pu–239 sind u. a. folgende Reaktionen möglich:

$$^{239}\mathrm{Pu}\,(\mathrm{n,f})\,^{108}\mathrm{Pd} + {}^{129}\mathrm{Xe} + 3\,\mathrm{n}$$
$$^{239}\mathrm{Pu}\,(\mathrm{n,f})\,^{155}\mathrm{Gd} + {}^{81}\mathrm{Br} + 4\,\mathrm{n}$$

Man berechne die freiwerdende Energie für beide Reaktionen.

2. Für die Eignung von Stoffen als Moderatoren ist das Verhältnis der Zahl der gestreuten Neutronen zu der Zahl der absorbierten Neutronen entscheidend. Für die Streuung ist der Wirkungsquerschnitt σ_s maßgebend, für die Absorption der Wirkungsquerschnitt σ_a. Bei Verbindungen setzt sich der Wirkungsquerschnitt additiv aus den Wirkungsquerschnitten der Elemente zusammen. An Hand der nachstehenden Tabelle ordne man die Stoffe H_2O, D_2O, Be, C (Graphit) in der Reihenfolge ihrer Eignung als Moderatoren.

	H–1	H–2	Be–9	C	O
σ_a (barn)	0,332	0,0005	0,0088	0,00373	0,0002
σ_s (barn)	38	7,0	7,0	4,8	4,2

3. Eine Lösung enthält 100 g auf 20% angereichertes Uranylsulfat pro l D_2O (d. h. 20 Molprozent des Urans sind U–235).
   a) Wie groß ist der Multiplikationsfaktor k_∞ ($\varepsilon p f \approx 1$)?
   b) Welche Dimension muß der kugelförmige Tank eines Reaktors näherungsweise besitzen, der mit einer solchen Brennstofflösung betrieben werden soll?

4. In welcher Zeit ist in einem Reaktor, der 100 kg U–235 enthält und mit einer Leistung von 10 MW betrieben wird, 1% des Brennstoffs verbraucht?

5. Ein Reaktor wird 1 Jahr mit einer Leistung von 1000 MW betrieben, dann werden die Spaltprodukte aufgearbeitet. Wie groß ist näherungsweise die Aktivität der Spaltprodukte
   a) bei Entnahme der Brennstoffelemente,
   b) nach einer Lagerungszeit von 1 Jahr,
   c) nach einer Lagerungszeit von 10 Jahren?
   (Vgl. Abb. (11–14))

6. Wie groß sind die Aktivität und die Menge an Sr–90 in einem Reaktor, der 1 Jahr mit einer Leistung von 1000 MW betrieben wurde?

7. Wie groß ist die im Gleichgewicht vorhandene Aktivität an J–131 in einem Reaktor, der mit einer Leistung von 1000 MW betrieben wird?

8. Wie groß ist die Menge an U–233, die in einem Reaktor bei einem Neutronenfluß $\Phi = 10^{13}\ \text{cm}^{-2}\ \text{s}^{-1}$ in einem Jahr pro kg Th–232 entsteht?

9. Der Karlsruher Forschungsreaktor FR–2 wird mit 5 t Natururan als Brennstoff und 18 t D_2O als Moderator und Kühlmittel betrieben. Die mittlere Flußdichte an thermischen Neutronen beträgt im Reaktorkern $8{,}9 \cdot 10^{12}\ \text{cm}^{-2}\ \text{s}^{-1}$. Wieviel Pu–239 und wieviel Np–237 werden pro Jahr erzeugt? (Der Wirkungsquerschnitt für die Kernreaktion $^{238}\text{U}(\text{n}, 2\text{n})^{237}\text{U}$ beträgt $\sigma = 1{,}5$ b, die Flußdichte der für diese Reaktion erforderlichen energiereichen Neutronen 0,55% der Flußdichte an thermischen Neutronen.)

   $$\left.\begin{array}{ll}\sigma_{n,\gamma}\ (\text{U–236}) & = 6\ \text{b} \\ \sigma_{n,f}\ (\text{Np–237}) & = 0{,}019\ \text{b}\end{array}\right\}\ \text{für thermische Neutronen}$$

   $$\left.\begin{array}{ll}\sigma_{n,f}\ (\text{U–238}) & = 1{,}0013\ \text{b} \\ \sigma_{n,f}\ (\text{Np–237}) & = 1\ \text{b}\end{array}\right\}\ \text{für 10 MeV Neutronen}$$

   Weitere Werte vgl. Tab. 11.1. und 11.15.

12. Großgeräte

12.1. Kernreaktoren

12.1.1. Bestrahlungsmöglichkeiten

In Kapitel 11 haben wir die Wirkungsweise und die wichtigsten Typen von Kernreaktoren besprochen. Die Kernreaktoren spielen für die Gewinnung von Radionukliden eine sehr wichtige Rolle; sie werden in vielfältiger Weise und mit verschiedenen Zusatzeinrichtungen als Großgeräte für kernchemische Untersuchungen eingesetzt. Meist werden Forschungsreaktoren verwendet, gelegentlich aber auch Leistungsreaktoren — vor allen Dingen dann, wenn größere Mengen wichtiger Radionuklide (z. B. Co–60) hergestellt werden sollen.

Für die Produktion von Radionukliden sind große Reaktoren mit hohem Neutronenfluß Φ erwünscht. Ein großer Reaktor bietet mehr Raum für die Unterbringung der zu bestrahlenden Substanz; außerdem wird in einem großen Reaktor der mittlere Neutronenfluß durch Proben mit hoher Neutronenabsorption weniger beeinflußt — insbesondere dann, wenn die Proben in größerem Abstand voneinander eingebracht werden können. Da die durch Bestrahlung erreichbare Aktivität dem Neutronenfluß direkt proportional ist (vgl. Gl. (8.79)), ist ein hoher Neutronenfluß in jedem Falle vorteilhaft; er ist immer dann erforderlich, wenn langlebige Radionuklide in größeren Mengen hergestellt werden sollen.

Viele chemische Verbindungen zersetzen sich bei höherer Temperatur. Die Zersetzungsgefahr ist noch größer, wenn gleichzeitig eine intensive Strahlung einwirkt. Deshalb muß bei der Bestrahlung in einem Reaktor die Temperatur berücksichtigt werden. Diese kann in gasgekühlten Reaktoren verhältnismäßig hoch sein (mehrere Hundert Grad). Oft besteht auch der Wunsch, bei sehr tiefer Temperatur zu bestrahlen, um die Ausheilung der chemischen Effekte, die durch die Kernreaktionen verursacht werden, zu unterbinden. Für diese Zwecke ist der Einbau einer Tieftemperaturkühlung erforderlich.

Die Bestrahlungen werden entweder in einem Bestrahlungsrohr oder direkt im Reaktor ausgeführt. Die Bestrahlungsrohre führen zum Teil in den Kern („core") des Reaktors; in diesen Bestrahlungsrohren kann der maximale Neutronenfluß ausgenutzt werden. Andere Bestrahlungsrohre führen am Kern des Reaktors vorbei. Bei Brennstoffelementen mit ringförmigem Querschnitt kann die Probe innerhalb des Brennstoffelements bestrahlt werden (vgl. Abb. (12–1)). Dort ist der

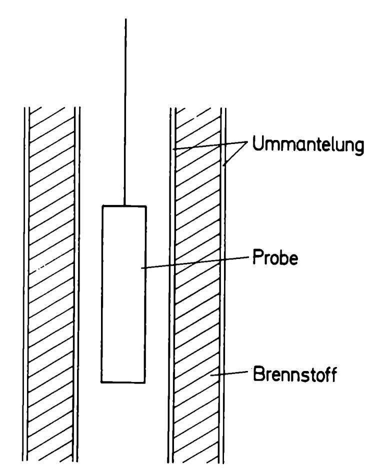


Abb. (12–1) Bestrahlung innerhalb eines Brennstoffelements mit ringförmigem Querschnitt.

Fluß an harten Neutronen besonders hoch, weil kein Moderator zugegen ist. Schwimmbadreaktoren zeichnen sich dadurch aus, daß sie von außen leicht zugänglich sind. Die Proben können direkt in den Reaktor eingehängt werden, bei einfachster Versuchsanordnung an einer Schnur; außerdem ist es möglich, fast jede beliebige Position oder Anordnung zu wählen. Schwimmbadreaktoren besitzen ferner den Vorteil, daß Apparaturen oder Teile von Apparaturen leicht innerhalb oder oberhalb des Reaktors installiert werden können. Schließlich ist infolge der Anwesenheit von Wasser die Temperatur stets verhältnismäßig niedrig. Aus diesen Gründen sind Schwimmbadreaktoren für kernchemische Untersuchungen gut geeignet.

Höchstflußreaktoren, die einen Neutronenfluß von etwa 10^{15} cm^{-2} s^{-1} besitzen, werden in der Kernchemie dann eingesetzt, wenn größere Mengen an langlebigen Nukliden hergestellt werden sollen. Solche langlebigen Nuklide sind zum Beispiel die Transplutoniumelemente sowie die Radionuklide U–232 und Pu–238, die für die Verwendung in Isotopenbatterien große Bedeutung besitzen.

Tabelle 12.1.
Aktivitäten in Ci/g in einem gepulsten Reaktor und in Reaktoren mit konstantem Neutronenfluß Φ für $\sigma = 1$ barn, H = 1 und M = 100 (vgl. Gl. (8.79))

Halbwertzeit $t_{1/2}$	Gepulster Reaktor (in einem Puls erreichte Aktivität)	Reaktor mit konstantem Neutronenfluß Φ (Sättigungsaktivität)		
	$\Phi_{max} = 10^{16}$ cm^{-2} s^{-1} Dauer des Pulses 1 ms	$\Phi =$ 10^{11} cm^{-2} s^{-1}	$\Phi =$ 10^{12} cm^{-2} s^{-1}	$\Phi =$ 10^{13} cm^{-2} s^{-1}
0,01 s	109			
0,1 s	11,4			
1 s	1,14	0,0163	0,163	1,63
10 s	0,114			
1 min	0,0163			

Für die Gewinnung und Untersuchung von kurzlebigen Radionukliden sind gepulste Reaktoren wichtig. In diesen Reaktoren ist die innere Sicherheit dadurch gewährleistet, daß bei zu hohem Neutronenfluß infolge örtlicher Überhitzung an der Oberfläche der Brennstoffelemente Gasbläschen entstehen, die sehr schlechte Moderatoreigenschaften besitzen und deshalb die Kettenreaktion sofort unterbrechen. Dieses Prinzip kann zum Beispiel bei den Reaktoren vom Typ „Triga“ verwirklicht werden, kleinen Schwimmbadreaktoren, deren Brennstoffelemente aus Uran und hydridhaltigem Zirkonium bestehen. Wenn der Sicherheitsstab des Reaktors herausgezogen wird, steigt der Neutronenfluß kurzfristig auf etwa 10^{16} cm^{-2} s^{-1} an. Die Dauer dieses Pulses beträgt nur etwa 1 ms. Es vergehen dann einige Minuten, bis die Effekte abgeklungen sind und der Reaktor seinen ursprünglichen Zustand wieder erreicht hat. Anschließend kann ein neuer Puls ausgelöst werden. Mit dem Puls ist wegen der hohen Überschußreaktivität eine kurzfristige intensive Čerenkov-Strahlung (vgl. Abschn. 6.3.2.) verbunden. In Tab. 12.1. sind die Aktivitäten angegeben, die bei verschiedener Halbwertzeit des Tochternuklids in einem solchen gepulsten Reaktor erreicht werden. Zum Vergleich sind die in normalen Reaktoren mit konstantem Neutronenfluß erhältlichen Aktivitäten aufgeführt. Die Tabelle zeigt, daß die Verwendung von gepulsten Reaktoren nur dann vorteilhaft ist, wenn die Halbwertzeiten der Radionuklide kleiner sind als etwa 1 s.

12.1.2. Zusatzeinrichtungen

Bei der Untersuchung kurzlebiger Radionuklide benutzt man meist eine pneumatisch betriebene Rohrpost. Dabei kann die Probe durch Druckluft oder ein anderes Gas in die Bestrahlungsposition eingeschossen und nach vorgegebener Bestrahlungszeit wieder herausgeschossen werden. Der Zeitbedarf für den Transport der Probe vom Ort der Bestrahlung an den Ort der Weiterverarbeitung oder Messung beträgt im allgemeinen etwa 0,1 bis 1 s. Am zweckmäßigsten endet die Rohrpost direkt unter einem Abzug, wo die Probe weiterverarbeitet wird, oder am Meßplatz, so daß jeder weitere Transport vermieden wird. Gewisse Schwierigkeiten bereitet gelegentlich die Vorbereitung der Proben zur Verwendung in einer Rohrpost, weil beim Aufprall Bruchgefahr besteht. Da der Behälter für die Probe möglichst nicht

aktiviert werden soll, wird er meist aus Kunststoff (z. B. Polyäthylen) hergestellt. Der in einer Rohrpost beförderte Behälter wird im englischen als „rabbit“ bezeichnet.

Manche größeren Forschungsreaktoren enthalten eine sogenannte thermische Säule. Diese ist neben dem Kern des Reaktors angeordnet und besteht meist aus Graphitblöcken mit Kanälen für die Einführung von Proben (vgl. Abb. (12–2)). Die Größe einer thermischen Säule be-

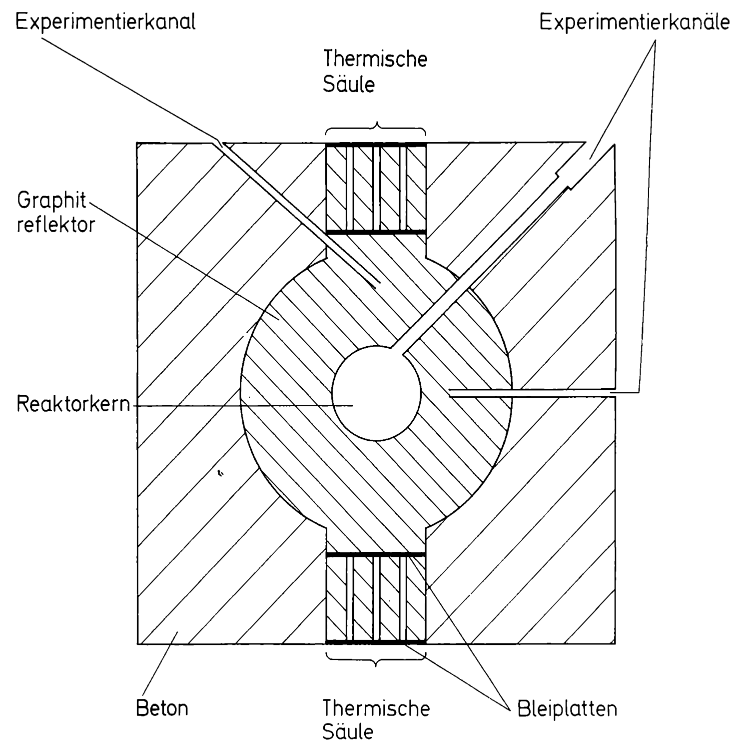


Abb. (12–2) Reaktor mit thermischen Säulen (schematisch).

trägt etwa 1 m × 1 m × 1 m. Infolge der Moderatoreigenschaften des Graphits sind nur thermische Neutronen — aber keine energiereichen Neutronen — vorhanden. Die γ-Strahlung aus dem Reaktor überlagert sich auch hier dem Neutronenfluß.

In vielen Fällen sind harte Neutronen erwünscht, zum Beispiel für (n, 2n)-, (n, p)- und (n, α)-Reaktionen. Wenn ein Reaktor zur Verfügung steht, ergeben sich verschiedene Möglichkeiten: So kann man z. B. in einem Brennstoffelement von ringförmigem Querschnitt bestrahlen (diese Möglichkeit wurde bereits besprochen), oder man kann die Probe in einem kleinen Behälter aus Uran unterbringen, der mög-

lichst viel U–235 enthält, und diesen Behälter in den Reaktor einführen. Dann entstehen durch die Kernspaltung des U–235 harte Neutronen, die direkt auf die Probe einwirken. Bei der Bestrahlung in einem Brennstoffelement oder in einem Behälter aus Uran wird der Fluß an harten Neutronen etwa um den Faktor 10 erhöht. Der wesentliche Nachteil der Bestrahlung in einem Uranbehälter ist die Entstehung der hochradioaktiven Spaltprodukte aus dem U–235. Eine andere Möglichkeit ist die Erzeugung von energiereichen Neutronen durch folgende Kernreaktionen:

$$^{6}\mathrm{Li}\,(\mathrm{n},\alpha)\,\mathrm{t} \tag{12.1}$$

$$\mathrm{d}\,(\mathrm{t},\mathrm{n})\,\alpha. \tag{12.2}$$

Die nach Gl. (12.1) aus den thermischen Neutronen des Reaktors entstehenden Tritonen besitzen eine Energie von 2,7 MeV, die α-Teilchen eine Energie von 2 MeV und die nach Gl. (12.2) durch Einwirkung der Tritonen auf Deuterium entstehenden Neutronen eine Energie von $\geqslant$ 14 MeV. Um diese Kernreaktionen zu ermöglichen, kann man die Probe mit Lithiumdeuterid LiD mischen oder zusammen mit LiD in den Reaktor einbringen. Der Fluß an 14 MeV-Neutronen, den man auf diese Weise in der Probe erhält, ist etwa um den Faktor 10^5 kleiner als der Fluß an thermischen Neutronen im Reaktor. So erreicht man z. B. in einem Reaktor mit einem Fluß $\Phi = 10^{13}\ \mathrm{cm}^{-2}\ \mathrm{s}^{-1}$ an thermischen Neutronen einen Fluß von etwa $10^8\ \mathrm{cm}^{-2}\ \mathrm{s}^{-1}$ an 14 MeV-Neutronen. Von der gleichen Größenordnung ist der Fluß an 14 MeV-Neutronen, den man mit einem Neutronengenerator erzielen kann (vgl. Abschn. 12.3.).

In manchen Fällen möchte man die thermischen Neutronen möglichst ganz zurückhalten und nur die energiereichen Neutronen im Reaktor für Kernreaktionen ausnutzen. Dies ist z. B. bei der Aktivierungsanalyse wichtig, wenn die Reaktionen mit thermischen Neutronen unterdrückt werden sollen. Zu diesem Zweck kann man die Probe in eine Folie oder ein Blech aus Cadmium einwickeln. Dieses Metall absorbiert die thermischen Neutronen ($\sigma_a = 2{,}45 \cdot 10^3$ b), läßt aber die energiereichen Neutronen hindurch.

Die hohe Intensität der γ-Strahlung im Reaktor stört oft sehr stark und ist deshalb unerwünscht. Eine Möglichkeit der Abhilfe besteht darin, daß man die Probe in einem Behälter unterbringt, der einen höheren Absorptionskoeffizienten für γ-Strahlung als für thermische Neutronen besitzt. Stoffe dieser Art sind Blei und Wismut. Aus dem

Tabelle 12.2.
Absorption von 1 MeV-γ-Strahlen und thermischen Neutronen in Blei und Wismut

Schichtdicke in cm	$\frac{I}{I_0}$ für γ-Strahlen		$\frac{I}{I_0}$ für Neutronen		Erniedrigung des Intensitätsverhältnisses $I_\gamma : I_N$ um den Faktor	
	Pb	Bi	Pb	Bi	Pb	Bi
0,2	0,852	0,869	0,999	0,9998	0,853	0,869
0,5	0,670	0,705	0,997	0,9995	0,672	0,705
1	0,449	0,497	0,994	0,9991	0,452	0,498
2	0,202	0,247	0,989	0,9981	0,204	0,248
5	0,018	0,030	0,972	0,9952	0,019	0,030

Wirkungsquerschnitt für die Absorption von thermischen Neutronen, der für Blei 0,17 b und für Wismut 0,034 b beträgt, berechnet man nach Abschnitt 8.6., daß der Absorptionskoeffizient für thermische Neutronen folgende Werte besitzt: $\mu_N(\text{Pb}) = 0{,}56 \cdot 10^{-2}\ \text{cm}^{-1}$, $\mu_N(\text{Bi}) = 0{,}96 \cdot 10^{-3}\ \text{cm}^{-1}$. Der Absorptionskoeffizient für γ-Strahlung von 1 MeV beträgt $\mu_\gamma(\text{Pb}) = 0{,}8\ \text{cm}^{-1}$, $\mu_\gamma(\text{Bi}) = 0{,}7\ \text{cm}^{-1}$. Mit diesen Werten erhält man aus dem Absorptionsgesetz

$$I = I_0 \cdot e^{-\mu d} \tag{12.3}$$

für verschiedene Schichtdicken d die in Tab. 12.2. eingetragenen Werte.

Mit Hilfe der Bestrahlungsrohre, die aus einem Reaktor nach außen führen, sind viele spezielle Untersuchungen möglich. So können beispielsweise monoenergetische Neutronen ausgeblendet und für die Bestimmung der Anregungsfunktionen von Kernreaktionen verwendet werden, d. h. zur Ermittlung der Wirkungsquerschnitte als Funktion der Energie (vgl. Abschn. 8.11.). Dabei ist wichtig, daß der Fluß der Neutronen genügend hoch ist; deshalb sind Hochflußreaktoren bevorzugt geeignet. Monoenergetische Neutronen finden auch Verwendung für die Untersuchung der Neutronenbeugung in Kristallen, insbesondere zur Kristallstrukturbestimmung. Der Unterschied zu den Röntgenverfahren besteht darin, daß leichte Atome, insbesondere Wasserstoffatome, durch Neutronenbeugung erfaßt werden können.

Das Verfahren der Neutronenbeugung ist deshalb vor allen Dingen für wasserstoffhaltige Substanzen wichtig, z. B. zur Lokalisierung von Wasserstoffbrückenbindungen in organischen Verbindungen.

12.2. Beschleuniger

12.2.1. Allgemeine Gesichtspunkte

Neben den Kernreaktoren besitzen auch die Beschleuniger große Bedeutung für kernchemische Untersuchungen und für die Produktion von Radionukliden. Sie zeichnen sich durch vielseitige Anwendbarkeit aus, weil verschiedene Arten von Geschossen in einem sehr großen Energiebereich erzeugt werden können. Geladene Teilchen, vor allen Dingen Elektronen und Protonen, aber auch Deuteronen, α-Teilchen und schwere Kerne, lassen sich auf sehr hohe Energien beschleunigen. Beim Auftreffen hochenergetischer Elektronen auf ein Target wird eine sehr harte Bremsstrahlung erzeugt, die für die Untersuchung von Kernreaktionen und die Erzeugung neutronenarmer Radionuklide (z. B. C–11) große Bedeutung besitzt. Protonen, Deuteronen, α-Teilchen und schwere Kerne können direkt als Geschosse für binukleare Kernreaktionen verwendet werden. Je nach der Art und der Energie der Teilchen können verschiedene Umwandlungen stattfinden (vgl. Kapitel 8). Neutronen können indirekt durch Kernreaktionen erzeugt werden, zum Beispiel in den sogenannten Neutronengeneratoren durch den Aufprall von Deuteronen auf ein Tritium-haltiges Target (vgl. Abschn. 12.3.).

12.2.2. Kaskadengenerator (Cockcroft-Walton-Generator)

Der Kaskadengenerator ist eine relativ einfache Maschine ohne bewegliche Teile. Er wurde von Cockcroft und Walton 1932 entwikkelt und erlaubt die Erzeugung von Gleichspannungen bis zu etwa 2 MV; der Teilchenstrom beträgt einige mA.

Der Kaskadengenerator ist in Abb. (12–3) schematisch aufgezeichnet. Das Gerät besteht aus einem System von Kondensatoren und Ventilen, die so angeordnet sind, daß ein gegebenes Potential U vervielfacht werden kann. Ein heißer Draht kann als Elektronenquelle dienen; eine Gasentladungsröhre, die mit Wasserstoff, Deuterium oder Helium gefüllt ist, liefert Protonen, Deuteronen oder α-Teilchen.

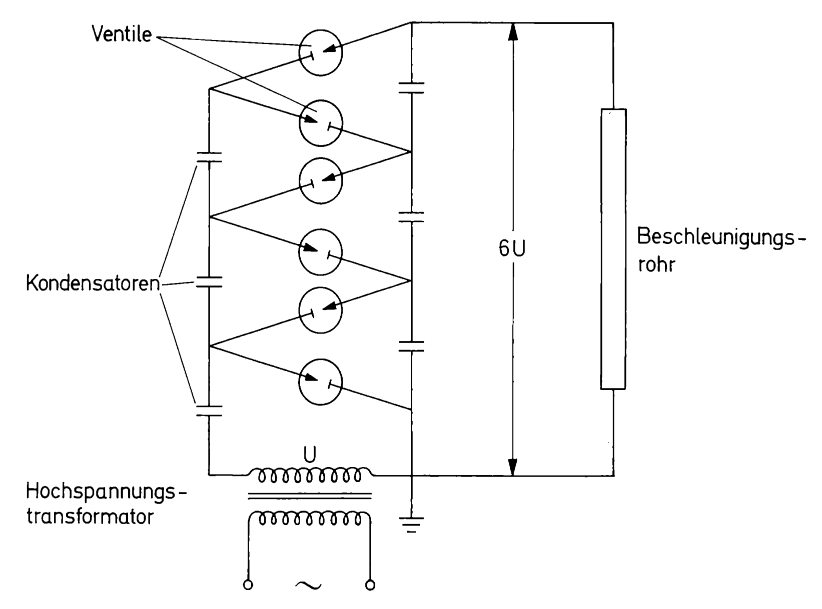


Abb. (12–3) Schema eines Kaskadengenerators.

12.2.3. Van de Graaff-Generator

In einem van de Graaff-Generator (auch elektrostatischer Generator oder Bandgenerator genannt) wird ein metallischer Hohlkörper durch dauernde Zufuhr von Ladung aufgeladen. In diesem Gerät, das von VAN DE GRAAFF 1931 entwickelt wurde, können vor allen Dingen Protonen und Deuteronen, aber auch Elektronen beschleunigt werden. In der ersten Maschine wurde eine Spannung von 1,5 MV erreicht. In neueren Ausführungen beträgt die Spannung bis zu etwa 10 MV, die Stromstärke einige mA.

Das Schema des van de Graaff-Generators ist in Abb. (12–4) angegeben. Die positive Ladung kann einer Gleichspannungsquelle (10 bis 30 kV) entnommen werden; sie wird auf einem Band aus Seide oder einem anderen isolierenden Material ins Innere des Hohlkörpers befördert und dort abgenommen. Infolge der Coulombschen Abstoßung sammelt sich die Ladung auf der Oberfläche des Hohlkörpers. Die Aufladung steigt solange an, bis ein Gleichgewicht zwischen Ladungszufuhr und -abfuhr erreicht ist. Die Isolationseigenschaften können verbessert werden durch Verwendung eines Drucktanks, der mit Luft oder Stickstoff bis zu etwa 15 at gefüllt ist. Das Entladungsrohr besteht meist aus Glas oder Porzellan.

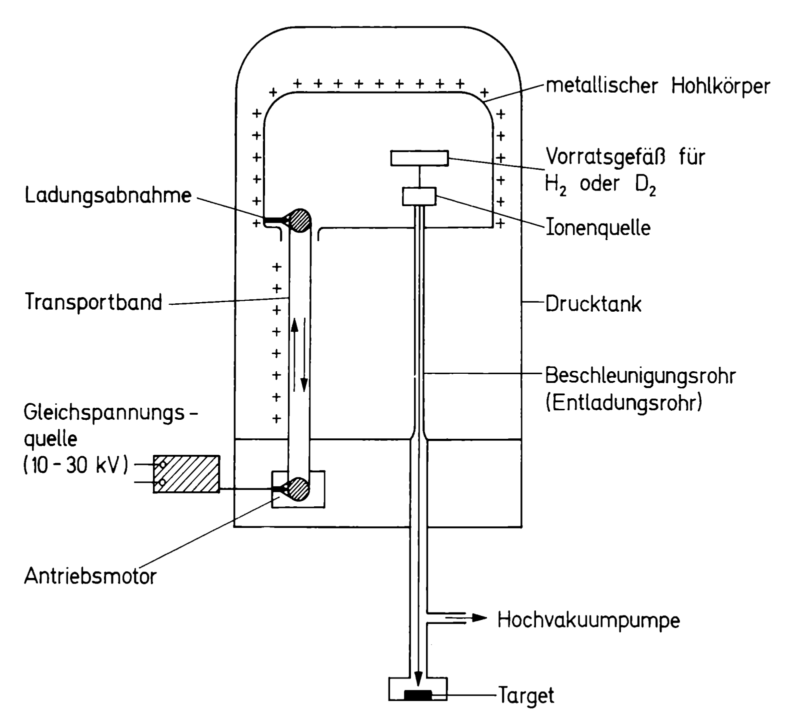


Abb. (12–4) Schema eines van de Graaff-Generators.

Durch Anwendung des „Tandem"-Prinzips, das erstmals 1936 vorgeschlagen wurde, kann bei gleicher Ausgangsspannung die Energie der Protonen oder Deuteronen ungefähr verdoppelt oder verdreifacht werden. In einem zweistufigen Tandemgerät werden durch Beschuß von Wasserstoff mit Protonen H^--Ionen erzeugt, die zunächst in Richtung auf die positive Hochspannung beschleunigt werden. Dort passieren sie einen mit Gas gefüllten Kanal, in dem sie durch Zusammenstöße ihre Elektronen verlieren. Die dabei entstehenden Protonen durchlaufen dann eine zweite Beschleunigungsstufe gegen das Nullpotential. Auf diese Weise können Protonen mit einer Endenergie von 20 MeV gewonnen werden. Die Stromstärke ist durch die Schwierigkeit, negative Ionen zu erzeugen, auf einige μA beschränkt. Auch die Konstruktion dreistufiger Tandemgeräte, die Teilchen mit einer Endenergie von 30 MeV liefern, ist möglich.

12.2.4. Linearbeschleuniger

Die Erzeugung sehr hoher Gleichspannungen wird durch Isolationsschwierigkeiten verhindert. Um bei gegebener Gleichspannung die Teilchen trotzdem auf hohe Energien beschleunigen zu können, wendet man das Prinzip der Vielfachbeschleunigung an. Dabei durchläuft das Teilchen mehrfach eine bestimmte Potentialdifferenz. Beim Linearbeschleuniger („Linac" = „linear accelerator") sind diese Beschleunigungsstufen hintereinander angeordnet.

Der Aufbau eines Linearbeschleunigers ist schematisch in Abb. (12–5) dargestellt. Ein „Paket" von Teilchen durchläuft zunächst die

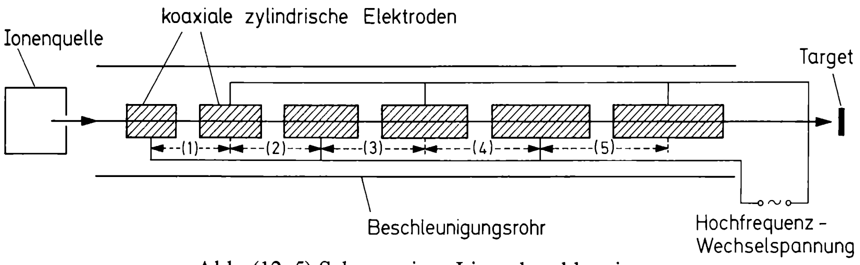


Abb. (12–5) Schema eines Linearbeschleunigers.

Beschleunigungsstrecke 1 zwischen dem ersten und dem zweiten Zylinder; dann wird umgeschaltet, so daß die Beschleunigungsspannung nun zwischen dem zweiten und dritten Zylinder anliegt. Die Länge der Beschleunigungsstrecken wird der wachsenden Geschwindigkeit der Teilchen angepaßt. Auf diese Weise entstehen Einzelimpulse monoenergetischer Teilchen.

Der erste Linearbeschleuniger wurde für schwere Ionen verwendet (1928); der Bau von Linearbeschleunigern für Protonen und Elektronen (ab 1948) wurde durch die Entwicklung der Hochfrequenztechnik gefördert. Zur Erzeugung hochenergetischer Elektronen besitzt der Linearbeschleuniger manche Vorteile, insbesondere weil hier die großen Energieverluste durch Strahlung, welche die Elektronen auf einer Kreisbahn erleiden, nicht auftreten. Geräte für Elektronenenergien bis zu 2 GeV sind an verschiedenen Stellen in Betrieb. In Stanford (USA) befindet sich ein 20- bis 40-GeV-Elektronenbeschleuniger, der eine Länge von etwa 3 km besitzt. Linearbeschleuniger für Protonen mit einer Endenergie von etwa 50 MeV werden im Zusammenhang mit Protonen-Synchrotrons verwendet. Schwerionen-Beschleuniger („hilac" = „heavy ion linear accelerator") für Energien von etwa 10 MeV pro Nukleon sind ebenfalls in Betrieb.

12.2.5. Zyklotron

Eine andere sehr häufig benutzte Methode ist die Vielfachbeschleunigung im Magnetfeld, die von LAWRENCE und LIVINGSTON 1930 entwickelt wurde. Das Zyklotron besteht aus 2 flachen halbkreisförmigen Metallbehältern, die sich innerhalb eines größeren flachen Behälters zwischen den Polen eines starken Elektromagneten befinden. Die Ionenquelle ist in der Mitte zwischen den beiden inneren Metallbehältern angeordnet, die als Elektroden wirken (vgl. Abb. (12–6)). Die

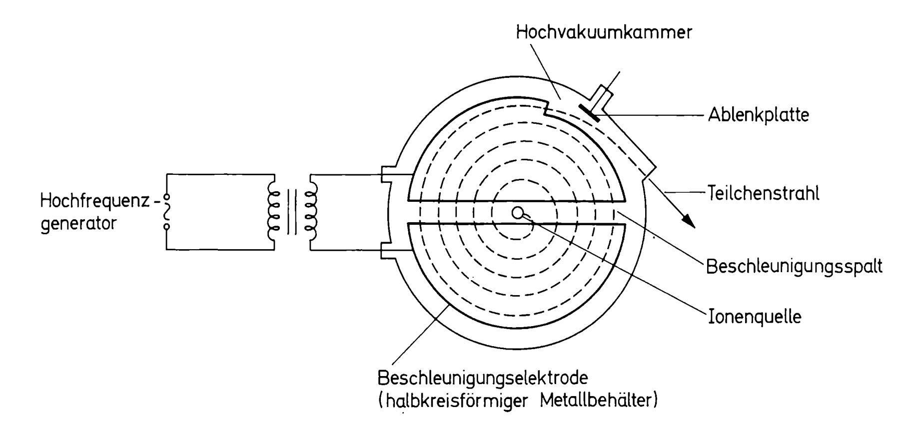


Abb. (12–6) Schema eines Zyklotrons.

Spannung wechselt mit hoher Frequenz, so daß die Ionen, die sich innerhalb dieser Behälter bewegen, fortlaufend beschleunigt werden. Unter dem Einfluß des magnetischen Feldes bewegen sich die geladenen Teilchen auf einer spiralförmigen Bahn derart, daß die Zentrifugalkraft der Kraftwirkung des Magnetfeldes gleich ist:

$$\frac{m \cdot v^2}{r} = Z \cdot e \cdot v \cdot B; \tag{12.4}$$

m ist die Masse, $Z \cdot e$ die Ladung, v die Geschwindigkeit und B die Induktionsflußdichte (oder magnetische Kraftflußdichte). Die Winkelgeschwindigkeit ist unabhängig von der Geschwindigkeit bzw. Energie

$$\omega = \frac{v}{r} = \frac{Z \cdot e \cdot B}{m}, \tag{12.5}$$

ebenso die Umlaufzeit $t = \frac{2\pi m}{Z \cdot e \cdot B}$. Daraus folgt, daß Ionen mit gleichem $\frac{Z \cdot e}{m}$-Wert, z. B. Deuteronen und α-Teilchen, auf die gleiche Geschwindigkeit beschleunigt werden. Der jeweilige Radius r beträgt:

$$r = \frac{m \cdot v}{Z \cdot e \cdot B}. \tag{12.6}$$

An der Peripherie können die Ionen durch eine Platte, die auf ein hohes Potential entgegengesetzten Vorzeichens aufgeladen ist, nach außen abgelenkt werden. Die erreichbare Energie ist durch den äußeren Radius R der Anordnung gegeben, unter dem das Teilchen das Zyklotron verläßt, und durch die magnetische Feldstärke H bzw. die Induktionsflußdichte $B = \mu_0 H$. Aus den Gln. (12.4) und (12.5) folgt:

$$\frac{m}{2} v^2 = \frac{1}{2} B^2 R^2 \frac{Z^2 \cdot e^2}{m}. \tag{12.7}$$

Da die kinetische Energie gleich dem Produkt aus der Ladung und der Spannung ist, die das Teilchen insgesamt durchlaufen hat,

$$\frac{m}{2} v^2 = Z \cdot e \cdot V, \tag{12.8}$$

folgt:

$$V = \frac{1}{2} B^2 \cdot R^2 \frac{Z \cdot e}{m}. \tag{12.9}$$

Die kinetische Energie ist somit unabhängig von der Spannung, die zwischen den beiden als Elektroden dienenden Metallbehältern angelegt wird. Ist diese Spannung verhältnismäßig niedrig, dann müssen die Teilchen häufiger umlaufen, bis sie die Endenergie erreichen. Die Frequenz ν, mit der die Spannung wechselt, muß mit der Induktionsflußdichte B so abgestimmt sein, daß Resonanz vorliegt:

$$\nu = \frac{\omega}{2\pi} = \frac{B}{2\pi} \frac{Z \cdot e}{m}. \tag{12.10}$$

Aus Gl. (12.9) folgt, daß in einem Zyklotron mit einem Polschuhdurchmesser von 150 cm Protonen mit einer Energie von etwa 10 MeV,

Deuteronen von etwa 20 MeV und α-Teilchen von etwa 40 MeV erzeugt werden können, wenn eine Induktionsflußdichte B von 6000 bzw. 12000 Gauß verwendet wird. Die Elektromagneten von größeren Geräten, die Protonen, Deuteronen und α-Teilchen mit einer Energie von etwa 50 bis 100 MeV liefern, enthalten etwa 100 t Eisen und 10 t Kupfer.

Die Energie, die in einem Zyklotron erreicht werden kann, ist durch die relativistische Massenänderung begrenzt. Berücksichtigt man, daß die Masse nach der Gleichung

$$m = \frac{m_0}{\sqrt{1-\left(\frac{v}{c}\right)^2}} \tag{12.11}$$

ansteigt (m_0 = Ruhemasse, c = Lichtgeschwindigkeit), so folgt, daß die Winkelgeschwindigkeit ω abnimmt, wenn sich die Geschwindigkeit v der Lichtgeschwindigkeit c nähert:

$$\omega = \frac{Z \cdot e \cdot B}{m_0} \sqrt{1-\left(\frac{v}{c}\right)^2}. \tag{12.12}$$

Die Teilchen bleiben dann zurück und werden nicht mehr beschleunigt. Dieser Effekt wird merklich, wenn die Massenzunahme $m - m_0$ einige Prozent der Ruhemasse beträgt. Ein Prozent Massenzunahme erreichen Elektronen bereits bei einer Energie von 5 keV, Protonen bei 10 MeV und α-Teilchen bei 40 MeV. Ein Zyklotron ist deshalb zur Beschleunigung von Elektronen ungeeignet.

12.2.6. Synchrozyklotron

Die Schwierigkeiten, die bei höherer Energie in einem Zyklotron aus der relativistischen Massenzunahme resultieren, können durch Anpassung der Frequenz ν an die verminderte Winkelgeschwindigkeit oder durch Erhöhung der magnetischen Feldstärke behoben werden. Das bedeutet aber, daß jeweils nur ein Paket von Teilchen in einem Einzelimpuls beschleunigt werden kann, ähnlich wie in einem Linearbeschleuniger. Das frequenzmodulierte Zyklotron wird als Synchrozyklotron bezeichnet, ein Zyklotron mit variablem magnetischem Feld meist als Synchrotron.

Das erste frequenzmodulierte Zyklotron wurde 1947 in Berkeley (Kalifornien) in Betrieb genommen; es erzeugte 200 MeV Deuteronen und 400 MeV α-Teilchen. Das Synchrozyklotron bei der CERN in Genf (vgl. Abb. (12–7)) erzeugt 600 MeV Protonen, ein ähnliches Ge-

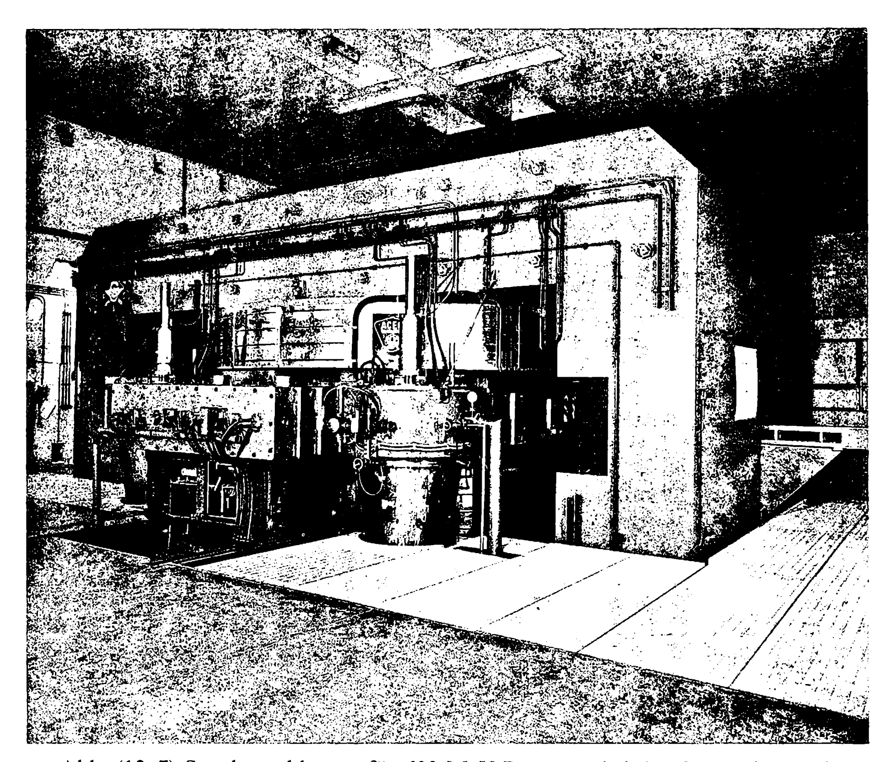


Abb. (12–7) Synchrozyklotron für 600 MeV Protonen bei der CERN in Genf.

rät im russischen Kernforschungszentrum Dubna 680 MeV Protonen; der Magnet hat ein Gewicht von 7000 t und einen Polschuhdurchmesser von 6 m.

12.2.7. Betatron

Wie bereits erwähnt, eignet sich das Zyklotron nicht zur Beschleunigung von Elektronen. Ein verhältnismäßig einfaches Gerät zur Erzeugung hochenergetischer Elektronen ist das Betatron, das auf dem Prinzip des sogenannten Wirbelbeschleunigers beruht. Dieses Gerät arbeitet wie ein Transformator; die Elektronen, die sich in einer ringförmigen Vakuumröhre befinden, stellen die Sekundärwicklung dar (vgl. Abb. (12–8)). Um die Elektronen in der vorgegebenen Kreisbahn zu

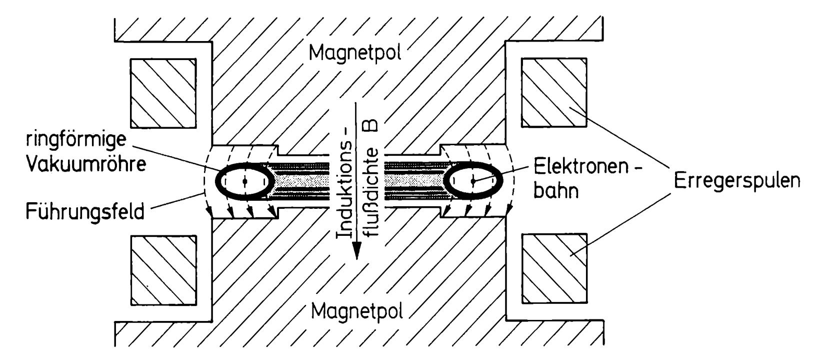


Abb. (12–8) Schema eines Betatrons.

halten, muß die magnetische Feldstärke der steigenden Energie der Elektronen angepaßt werden. Ebenso wie in einem Transformator ist die pro Umlauf induzierte Spannung gleich der Änderungsgeschwindigkeit des magnetischen Flusses $\mathrm{d}\Phi/\mathrm{d}t$. Die auf das Elektron wirkende Kraft ist

$$\frac{\mathrm{d}}{\mathrm{d}t}(mv) = e \cdot E = \frac{e}{2\pi R}\,\frac{\mathrm{d}\Phi}{\mathrm{d}t} \tag{12.13}$$

(e ist die elektrische Elementarladung, E die elektrische Feldstärke). Damit das Elektron in der Kreisbahn mit dem Radius R bleibt, muß gleichzeitig die Induktionsflußdichte B erhöht werden. Für diese gilt nach Gl. (12.4)

$$B \cdot R \cdot e = mv, \tag{12.14}$$

so daß

$$\frac{d}{\mathrm{d}t}(m \cdot v) = R \cdot e \cdot \frac{\mathrm{d}B}{\mathrm{d}t}. \tag{12.15}$$

Durch Gleichsetzen der beiden Gln. (12.13) und (12.15) folgt:

$$\frac{\mathrm{d}\Phi}{\mathrm{d}t} = 2\pi R^2\,\frac{\mathrm{d}B}{\mathrm{d}t}. \tag{12.16}$$

Die Elektronen werden in dem Augenblick injiziert, in dem die Induktionsflußdichte von dem Wert 0 ansteigt. Wenn sie den Maximalwert erreicht hat, wird das Magnetfeld durch einen zusätzlichen Stromstoß plötzlich verändert, so daß die Elektronen auf ein Target auftref-

fen oder aus dem Gerät austreten. In kleineren Geräten werden Energien von etwa 6 MeV erreicht, in größeren Geräten bis zu etwa 500 MeV. Für die Erzeugung hochenergetischer Elektronen müssen allerdings verhältnismäßig große Magnete verwendet werden, um die erforderliche Variation der Induktionsflußdichte zu ermöglichen.

12.2.8. Elektronen-Synchrotron

Die Geschwindigkeit von Elektronen mit einer Energie von 2 MeV beträgt bereits 99,18% der Lichtgeschwindigkeit. Die Geschwindigkeit und damit auch die Umlaufgeschwindigkeit in einem Betatron steigen deshalb bei höherer Energie praktisch nicht mehr an. Die weitere Beschleunigung kann durch ein hochfrequentes elektrisches Feld erfolgen; dabei wird die magnetische Feldstärke bei konstanter Frequenz erhöht. Für diese Zwecke kann ein ringförmiger Magnet verwendet werden (vgl. Abb. (12–9)), was eine erhebliche Materialersparnis be-

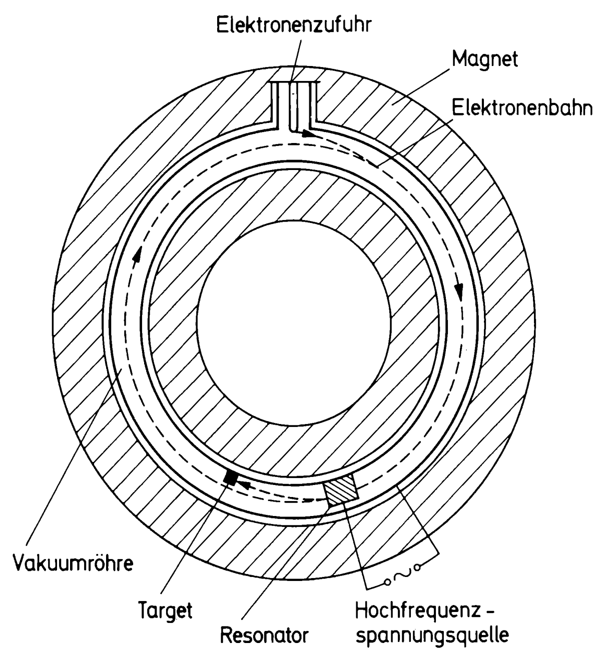


Abb. (12–9) Schema eines Elektronen-Synchrotrons.

deutet. Das Elektronen-Synchrotron ist somit ein Betatron mit synchroner Nachbeschleunigung der Elektronen.

Geräte, die Elektronen von etwa 300 bis 500 MeV liefern, benötigen einen Magneten von etwa 50 t. Ein derartiges Gerät für 500 MeV Elektronen befindet sich im Physikalischen Institut der Universität Bonn. Die obere erreichbare Grenze der Elektronenenergie beträgt etwa 1000 MeV = 1 GeV; sie ist durch die Verluste an Strahlungsenergie bedingt, die mit der vierten Potenz des Verhältnisses E / E_0 ansteigen ($E_0 = m_0 c^2$).

12.2.9. Protonen-Synchrotron

Protonen können wegen ihrer größeren Ruhemasse auf erheblich höhere Energien beschleunigt werden als Elektronen, bevor sich die Strahlungsverluste bemerkbar machen. Da ihre Ruhemasse um etwa den Faktor 2000 größer ist, liegt die durch Strahlungsverluste bedingte obere erreichbare Grenzenergie der Protonen bei etwa 2000 GeV.

Die Arbeitsweise des Protonen-Synchrotrons ist ähnlich der des Elektronen-Synchrotrons (vgl. Abb. (12–10)). Die Protonen werden

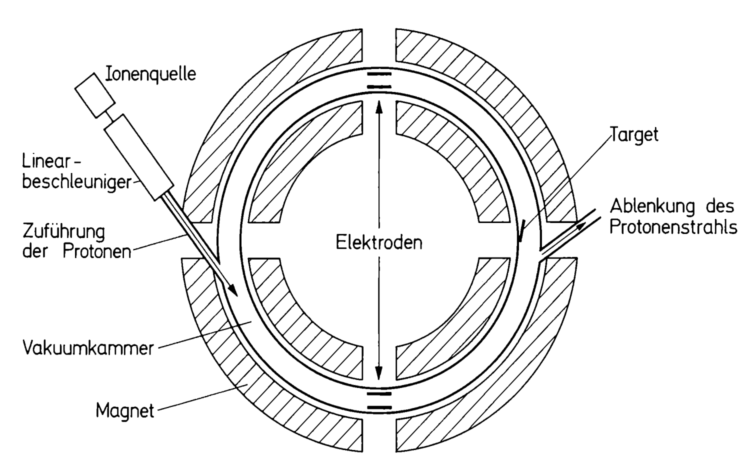


Abb. (12–10) Schema eines Protonen-Synchrotrons.

in einer ringförmigen Vakuumkammer beschleunigt, die sich innerhalb eines verhältnismäßig großen ringförmigen Magneten befindet. Da die Geschwindigkeit der Protonen erst bei sehr hohen Energien der Lichtgeschwindigkeit nahekommt, ändert sich ihre Umlauffrequenz während der Beschleunigung sehr stark. Die Protonen werden in Form einzelner Pakete (Pulse) in die Bahn injiziert und durch ein oszillierendes Magnetfeld beschleunigt, das sich in Resonanz mit der Bewegung

der Protonen befindet. Wenn das Maximum der Energie erreicht ist, wird die Frequenz geändert, so daß die Protonen auf ein Target auftreffen oder nach außen abgelenkt werden. Frequenz und Induktionsflußdichte werden während der Beschleunigung variiert, um die Protonen in der Kreisbahn zu halten.

Die Geräte, in denen Protonenenergien von etwa 10 GeV erreicht werden können, werden auch als Kosmotron (Brookhaven, USA) oder Bevatron (Berkeley, USA) bezeichnet, weil die Energien vergleichbar sind mit der kosmischen Strahlung bzw. im Bereich von 1 „Billion" (angelsächsisch) eV = 1 GeV liegen. Das Kosmotron in Brookhaven (USA) besitzt einen Magneten mit einer Induktionsflußdichte, die während der Beschleunigung der Protonen von 300 Gauß auf 14000 Gauß ansteigt; gleichzeitig wird die Radiofrequenz von $\approx$ 0,4 auf $\approx$ 4 MHz erhöht. Der ringförmige Magnet besteht aus einzelnen Sektoren aus Stahl mit einem Querschnitt von etwa 2,5 m × 2,5 m. Er wiegt etwa 2000 t. Die Einzelimpulse von Protonen werden in einem elektrostatischen Generator auf etwa 3,5 MeV beschleunigt und dann in die ringförmige Bahn des Kosmotrons eingeschleust; diese hat einen Durchmesser von etwa 18 m. Innerhalb einer Sekunde laufen die Protonen etwa $3 \cdot 10^6$ mal um, ehe sie ihre Maximalenergie erreichen. Dann kann eine neue Beschleunigungsphase erfolgen. Ein größeres Gerät dieser Art steht im russischen Kernforschungszentrum in Dubna. Der Durchmesser der Kreisbahn der Protonen beträgt 56 m. Der ringförmige Magnet wiegt 36000 t; die Leistungsaufnahme ist 140 MW.

12.2.10. Protonen-Synchrotron mit alternierendem Gradienten

Die außerordentlich hohen Kosten für das Protonen-Synchrotron (Größenordnung 100 Millionen DM) bildeten zunächst eine Grenze für die weitere Entwicklung. Deshalb suchte man nach neuen Möglichkeiten zur Verbesserung der Geräte. Ein wichtiger Gesichtspunkt war die Stabilisierung der Protonenbahn. Im Kosmotron von Brookhaven, USA, bewegen sich die Protonen in einem Ring, der einen Querschnitt von etwa 90 cm × 18 cm besitzt. Dementsprechend müssen die Magnete dimensioniert sein. Wenn die Bahn der Protonen besser stabilisiert werden kann, ist es möglich, sowohl den Querschnitt des Rohres, in dem die Protonen umlaufen, als auch den Magneten kleiner zu wählen. Die bessere Stabilisierung gelingt in dem stark fokussierenden Synchrotron mit alternierendem Gradienten (AG Protonen-Synchro-

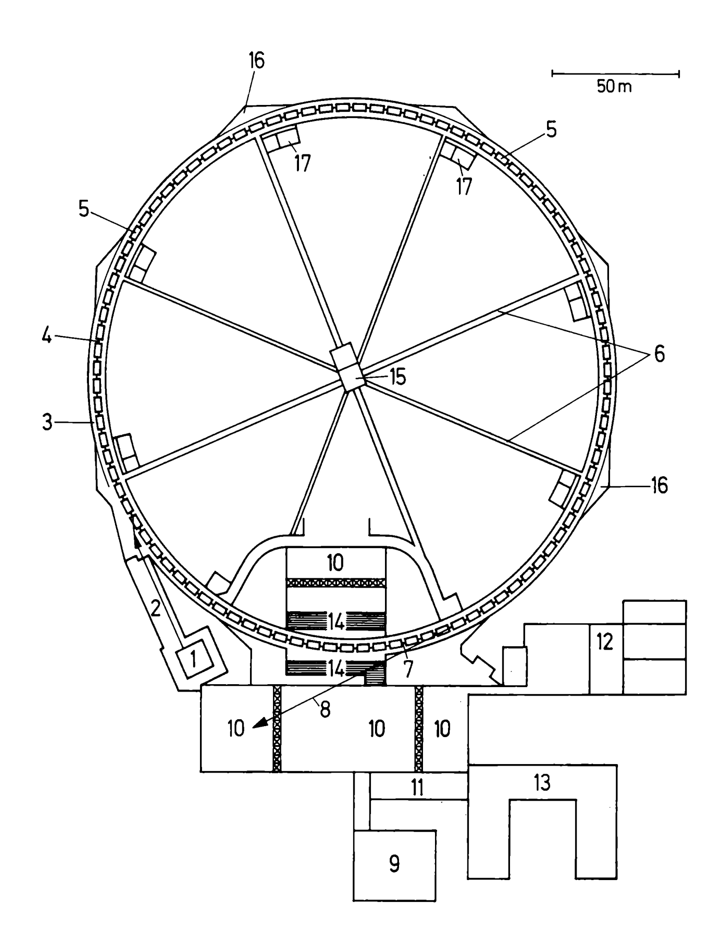


Abb. (12–11) Aufbau des AG Protonen-Synchrotrons bei der CERN in Genf (vgl. K. H. Reich: Kerntechnik **3** (1961) 345).

1 Vorbeschleunigung der Protonen (500 keV)
2 Linearbeschleuniger (10, 30, 50 MeV)
3 Ringtunnel mit 100 Magneteinheiten und 16 Beschleunigungseinheiten
4 Vakuumkammer (7 × 14,5 cm; 10^{-6} Torr) für die Protonen
5 Eine der 100 Magneteinheiten (4,4 m; 32 t)
6 Begehbare Radialtunnels
7 Einführung der Targets
8 Abgelenkter Protonenstrahl
9 Generatorgebäude für die Experimentiergeräte in 10
10 Experimentierhallen
11 Kontrollraum
12 Magnetstromversorgungsanlage
13 Laboratorien
14 Bewegliche Abschirmwände
15 Zentrale Beaufsichtigungs- und Radiofrequenzkontrollstation
16 Trigonometrische Punkte für die Vermessung des Ringmagneten
17 Radiofrequenzausrüstung

tron). Der Aufbau ist schematisch in Abb. (12–11) angegeben. Ein Gerät dieser Art arbeitet seit 1959 in dem europäischen Forschungszentrum CERN bei Genf, ein zweites Gerät seit 1960 in Brookhaven, USA. Der Querschnitt der ringförmigen Vakuumkammer für die Protonen beträgt nur noch etwa 16 cm × 8 cm. Die Magnete haben die Form eines C und sind so angeordnet, daß ihre Öffnung abwechselnd nach innen und nach außen gerichtet ist. Die Pole der Magnete sind so geformt, daß die Induktionsflußdichte abwechselnd erhöht und erniedrigt wird. Dadurch erreicht man eine starke Fokussierung. Das Gesamtgewicht des Magneten beträgt „nur" etwa 3200 t. Die Protonen werden in einem Linearbeschleuniger zunächst auf 50 MeV beschleunigt und dann in die Kreisbahn des Synchrotrons eingeschossen. Der Durchmesser der Vakuumkammer, in der die Protonen weiter beschleunigt werden, beträgt rund 250 m. Die Beschleunigung dauert etwa 1 s. Die Protonen erreichen eine Endenergie von 28 bis 30 GeV; ihre Geschwindigkeit ist größer als 99,9% der Lichtgeschwindigkeit, ihre Masse etwa 30mal so groß wie die Ruhemasse. Die Zahl der Pulse beträgt 20 pro Minute, die Zahl der Protonen 10^{11} pro Puls.

Weitere Geräte mit noch höherer Endenergie der Protonen (70 GeV) sind in Serpukhov (UdSSR) im Bau. Geräte für Protonenenergien bis zu 300 GeV sind in den USA und bei CERN in Genf geplant.

12.3. Neutronenquellen und Neutronengeneratoren

Die verschiedenen Möglichkeiten zur Erzeugung von Neutronen haben wir in Abschnitt 8.5. besprochen. Einfache Neutronenquellen können durch Mischen von Berylliumpulver mit einer Radium-, Polonium-, Plutonium- oder Curium-Verbindung hergestellt werden, z. B. nach folgender Arbeitsvorschrift: 100 mg Radium in Form von Radiumchlorid werden mit 500 mg feinstem Berylliumpulver und etwas Wasser zu einer Paste verrührt. Diese wird bei 150 °C im Trockenschrank gründlich getrocknet, pulverisiert, gepreßt und in einem kleinen Röhrchen aus Nickel luftdicht eingeschlossen.

In diesen Neutronenquellen werden nach der Kernreaktion

$$^{9}\mathrm{Be}(\alpha, \mathrm{n})\,^{12}\mathrm{C} \qquad (12.17)$$

Neutronen erzeugt. Bei Verwendung von Ra–226 ist wegen der intensiven γ-Strahlung der Aufwand für die Abschirmung etwas größer als bei den anderen Radionukliden. Polonium ist verhältnismäßig kurz-

lebig, so daß auch die Neutronenproduktion bald abklingt. Plutonium und die Transplutoniumelemente sind nicht überall leicht zugänglich.

Bei den sogenannten Photoneutronenquellen wird die Kernreaktion

$$^{9}\mathrm{Be}(\gamma, \mathrm{n})\,^{8}\mathrm{Be} \longrightarrow 2\,\alpha \tag{12.18}$$

ausgenutzt. Die γ-Quanten müssen eine Mindestenergie von 1,665 MeV besitzen. Geeignet ist Sb–124, das durch Bestrahlung von Antimon in einem Reaktor gewonnen wird. Zur Herstellung dieser Neutronenquellen mischt man Antimon- und Berylliumpulver in ähnlicher Weise, wie oben für die Radium-Beryllium-Neutronenquelle angegeben, und bestrahlt diese Mischung in einem Reaktor. Dabei wird das Antimon nach der Reaktion $^{123}\mathrm{Sb}(\mathrm{n}, \gamma)\,^{124}\mathrm{Sb}$ aktiviert. Die Neutronenerzeugung in dieser Neutronenquelle klingt mit der Halbwertzeit des Sb–124 ($t_{1/2} = 60\,\mathrm{d}$) ab.

Tabelle 12.3.
Neutronenausbeute verschiedener Neutronenquellen

Neutronenquelle		Halbwertzeit	Neutronenausbeute (Zahl der Neutronen pro s und Ci)
^{210}Po/Be	(α, n)	138,4 d	$2{,}5 \cdot 10^{6}$
^{210}Pb/Be	(α, n)	21 a	$2{,}3 \cdot 10^{6}$
^{226}Ra/Be	(α, n)	1 602 a	$1{,}3 \cdot 10^{7}$
^{227}Ac/Be	(α, n)	21,6 a	$1{,}8 \cdot 10^{7}$
^{228}Th/Be	(α, n)	1,9 a	$2{,}5 \cdot 10^{7}$
^{239}Pu/Be	(α, n)	$2{,}4 \cdot 10^{4}$ a	$1{,}4 \cdot 10^{6}$
^{241}Am/Be	(α, n)	458 a	$2{,}7 \cdot 10^{6}$
^{226}RaBeF$_4$	(α, n)	1 602 a	$2{,}4 \cdot 10^{6}$
^{124}Sb/Be	(γ, n)	60 d	1 bis $5 \cdot 10^{6}$

Tab. 12.3. gibt eine Übersicht über die Neutronenausbeute $\mathrm{d}N/\mathrm{d}t$ (Zahl der Neutronen pro Sekunde), die mit solchen Neutronenquellen erzielt werden kann. Der Neutronenfluß nimmt mit dem Quadrat des Abstandes von der Neutronenquelle ab. Betrachtet man die Neutronenquelle näherungsweise als punktförmig, so folgt für die Flußdichte Φ im Abstand R:

$$\Phi = \frac{1}{4\pi R^2} \frac{\mathrm{d}N}{\mathrm{d}t}. \tag{12.19}$$

Um thermische Neutronen zu gewinnen, müssen die aus der Neutronenquelle austretenden Neutronen abgebremst werden. Am besten eignet sich dafür Paraffin. Deshalb wird die Neutronenquelle meist in der Mitte eines Gefäßes untergebracht, das mit Paraffin gefüllt ist (Abb. (12–12)). Das Verhältnis der Zahl der thermischen Neutronen

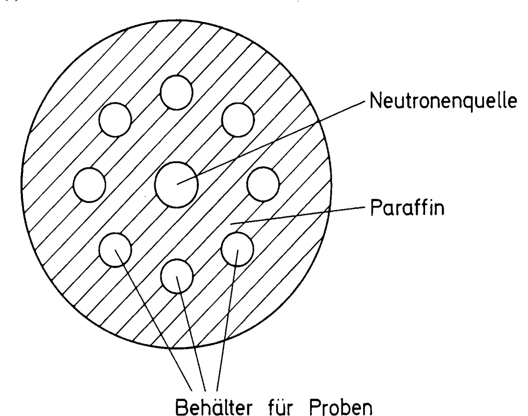


Abb.(12–12) Anordnung der Proben bei der Bestrahlung mit einer Neutronenquelle.

zu der Zahl der energiereichen Neutronen nimmt mit der Schichtdicke an Paraffin, d. h. mit dem Abstand von der Neutronenquelle, zu. Andererseits nimmt aber der Neutronenfluß nach Gl. (12.19) mit dem Quadrat des Abstandes ab. Man begnügt sich deshalb meist mit einer Schichtdicke von einigen cm Paraffin zwischen Neutronenquelle und Probe. So beträgt der Neutronenfluß nach Gl. (12.19) bei einer Neutronenausbeute $\mathrm{d}N/\mathrm{d}t = 10^6\ \mathrm{s}^{-1}$ und einem Abstand $R = 3$ cm vom Mittelpunkt der Neutronenquelle $\Phi \approx 10^4\,\mathrm{cm}^{-2}\,\mathrm{s}^{-1}$. Dieser Neutronenfluß reicht nur für einfache Versuche aus, wenn die Wirkungsquerschnitte verhältnismäßig hoch sind. Für die Gewinnung von Radionukliden und für Aktivierungen sind die Neutronenquellen im allgemeinen nicht geeignet.

In Neutronengeneratoren werden die primär erzeugten Protonen oder Deuteronen zur Gewinnung von Neutronen verwendet. Am wichtigsten sind folgende Kernreaktionen:

$$^{9}\mathrm{Be}\,(\mathrm{d,n})\,^{10}\mathrm{B}, \tag{12.20}$$

$$\mathrm{t}\,(\mathrm{d,n})\,\alpha. \tag{12.21}$$

In den Abbn. (12–13) und (12–14) ist die Neutronenausbeute (Neutronen pro s und μA) als Funktion der Energie der Deuteronen

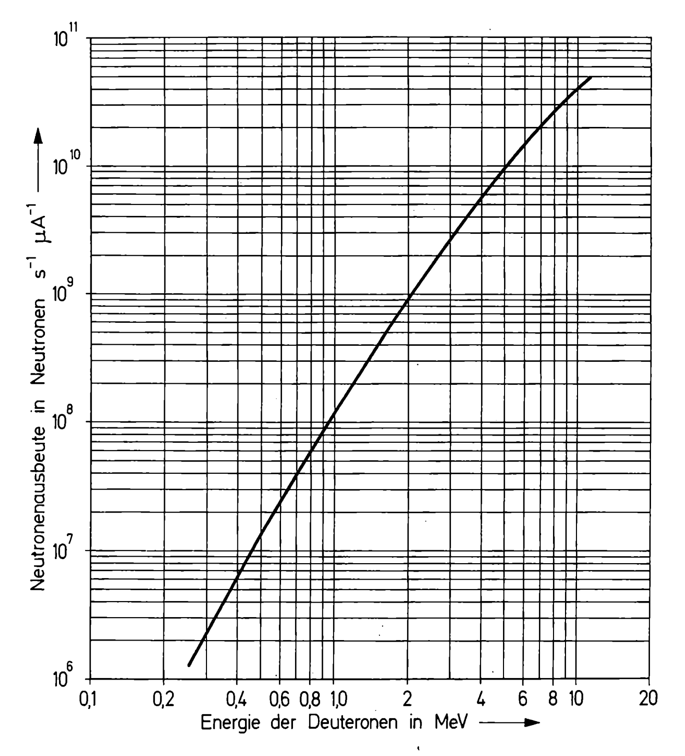


Abb. (12–13) Neutronenausbeute der Reaktion $^{9}Be(d, n)^{10}B$ als Funktion der Energie der Deuteronen (dickes Berylliumtarget).

aufgezeichnet. Man erkennt, daß bereits mit Beschleunigern mittlerer Leistung und Energie verhältnismäßig hohe Neutronenausbeuten erreicht werden können. Aus diesem Grunde werden verschiedene, verhältnismäßig handliche Geräte für die Verwendung in Laboratorien gebaut, insbesondere solche, die nach der Reaktion (12.21) 14 MeV-Neutronen liefern. In Abb. (12–15) ist der Aufbau eines Neutronengenerators schematisch aufgezeichnet. In einem solchen Gerät werden Deuteronen auf etwa 200 bis 400 keV beschleunigt. Bei einer Stromstärke von 0,1 mA und einem Tritiumgehalt des Targets von 1 Ci beträgt die Neutronenausbeute ungefähr 10^{10} Neutronen von 14 MeV pro Sekunde. Die Flußdichte an Neutronen ist nach Gl. (12.19) umgekehrt proportional dem Quadrat des Abstandes zwischen Probe und Target. Die Geräte können für die Herstellung kleinerer Mengen von Radionukliden, die Untersuchung von Kernreaktionen mit energiereichen Neutronen und für die Aktivierungsanalyse eingesetzt werden.

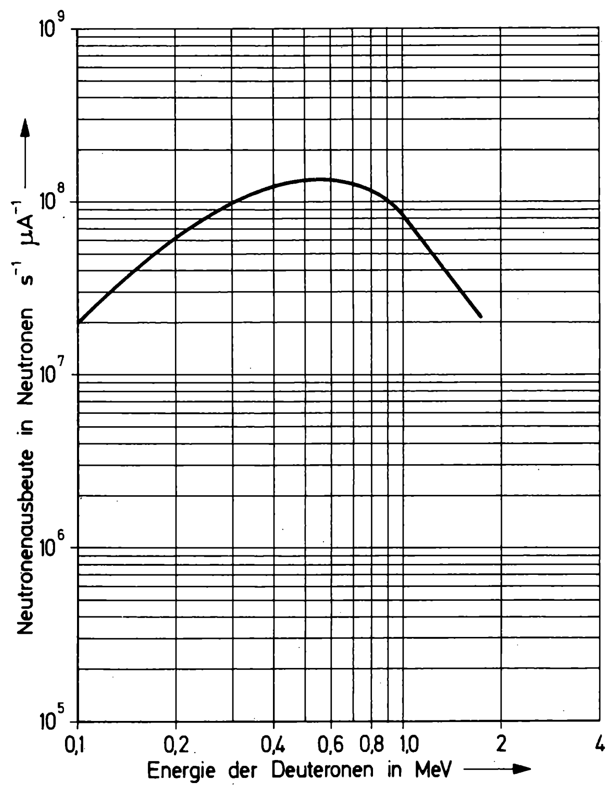


Abb. (12–14) Neutronenausbeute der Reaktion t(d, n)α als Funktion der Energie der Deuteronen (Titan-Tritium-Target mit etwa 1 Ci Tritium).

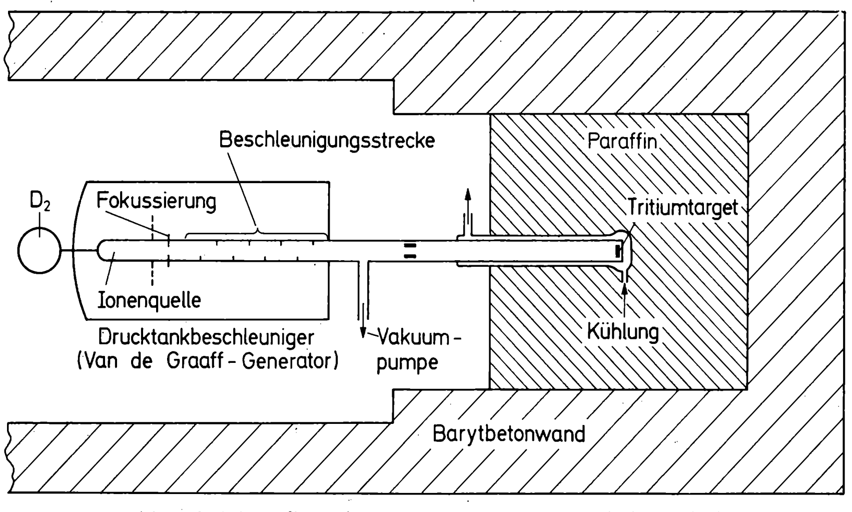


Abb. (12–15) Aufbau eines Neutronengenerators (schematisch).

Nicht ganz einfach ist die Herstellung geeigneter Tritium-Targets. Sie erwärmen sich bei der Bestrahlung durch den Aufprall der energiereichen Deuteronen und die bei der Kernreaktion freiwerdende Energie sehr stark und müssen deshalb gut gekühlt werden. Als zweckmäßig haben sich Tritium-Targets erwiesen, in denen das Tritium als Hydrid, z. B. als Titanhydrid, auf einer Unterlage von Kupfer vorliegt. Zur Herstellung solcher Targets wird das Kupfer zunächst durch Aufdampfen im Hochvakuum mit Titan beschichtet und dann bei höherer Temperatur mit Tritium behandelt, wobei sich Titanhydrid bildet. Bei der Bestrahlung mit Deuteronen geben die Targets allmählich etwas Tritium ab. Auch andere Hydride, zum Beispiel der Seltenen Erden, werden auf ihre Eignung zur Herstellung von Tritium-Targets untersucht.

Durch Abbremsen der hochenergetischen Neutronen aus einem Neutronengenerator können auch thermische Neutronen gewonnen werden. Hierbei gelten die gleichen Überlegungen wie bei einer Neutronenquelle: Zum Abbremsen ist eine dickere Paraffinschicht erforderlich; andererseits sinkt der Neutronenfluß mit dem Quadrat des Abstandes. Bei einer Neutronenausbeute $dN/dt = 10^{10}\ s^{-1}$ beträgt der Neutronenfluß nach Gl. (12.19) in einem Abstand von 3 cm $10^8\ cm^{-2}\ s^{-1}$ und in einem Abstand von 10 cm $10^7\ cm^{-2}\ s^{-1}$.

Zur Abschirmung eines Neutronengenerators werden größere Mengen Paraffin benötigt, um die hochenergetischen Neutronen abzubremsen (vgl. Abb. (12–15)). Bor, das in elementarer Form oder als Borsäure dem Paraffin beigemischt bzw. als getrennte Schicht angeordnet werden kann, dient zum Einfang der abgebremsten Neutronen. Eine Wand aus Beton oder anderem Material absorbiert die harte Röntgenstrahlung, die beim Betrieb des Gerätes durch den Aufprall der Elektronen entsteht, welche im Beschleunigungsrohr in entgegengesetzter Richtung beschleunigt werden wie die Deuteronen.

12.4. Massenspektrometer und Massenseparatoren

Die Wirkungsweise eines Massenspektrometers und eines Massenseparators haben wir bereits in Abschnitt 4.6. besprochen. Diese Geräte spielen als Großgeräte bei Untersuchungen mit stabilen Isotopen in der Kernchemie eine wichtige Rolle. Massenspektrometer finden für die quantitative Analyse von Isotopengemischen Verwendung, Massenseparatoren für die Trennung größerer Mengen von Isotopenge-

mischen. Mit Hilfe von Massenseparatoren können sehr reine Isotope in Mengen von der Größenordnung 1 g gewonnen werden.

Beide Geräte sind für alle Elemente anwendbar unter der Voraussetzung, daß eine Verflüchtigung möglich ist. Gasförmige und leicht flüchtige Verbindungen können direkt eingeschleust und nach Ionisierung in der Ionenquelle getrennt werden. Schwerflüchtige — insbesondere feste — Verbindungen müssen zunächst verdampft werden. Verdampfungseinrichtungen sind in den Ionenquellen für Festkörperpräparate eingebaut. Die Massenspektrometer, vor allen Dingen aber die Massenseparatoren, sind in den meisten Fällen so konstruiert, daß sie bevorzugt für die Trennung leichter, mittlerer oder schwerer Massen geeignet sind.

Wichtige Daten eines Massenspektrometers sind:

a) Das Massenauflösungsvermögen; dieses hängt vom Austrittsspalt der Ionen ab und gibt an, welche Massenunterschiede noch erkennbar sind. „Auflösungsvermögen 1500, 1% Beitrag zur Nachbarmasse" z. B. bedeutet, daß bei einem Molekül mit der Massenzahl 1500 1% der Intensität bei den Nachbarmassen 1499 und 1501 auftritt bzw. daß die beiden Ionen $^{16}O^{+}$ und $^{12}CH_4^{+}$ getrennt werden ($M/\Delta M = 440$).

b) Die Nachweisgrenze; diese gibt an, welche Mengen und in welchem Verhältnis zwei Komponenten nebeneinander nachgewiesen werden können. Der kleinste noch nachweisbare Partialdruck in der Ionenquelle liegt meist in der Größenordnung 10^{-13} Torr, die Grenze für die Nachweisbarkeit in einem Isotopengemisch bei etwa $1 : 10^{6}$.

c) Die Meßgenauigkeit bei Isotopenverhältnismessungen; diese ist, wenn das Isotopenverhältnis im Bereich 1 : 1 bis 1 : 100 liegt, im allgemeinen besser als 0,01%.

In den verschiedenen Massenseparatoren werden größere Mengen von etwa 40 Elementen in ihre Isotope zerlegt. Ungefähr 200 auf diese Weise getrennte stabile Nuklide befinden sich im Handel. Besondere Bedeutung besitzen die Separatoren für schwere Nuklide, zum Beispiel für die Isotope des Plutoniums. Die schwereren Plutoniumisotope, Pu–240, Pu–242 und Pu–244, die nach langer Neutronenbestrahlung im Reaktor aus Pu–239 entstehen (vgl. Tab. 11.15.), eignen sich zur Herstellung von Transplutoniumelementen. Sie werden in Schwerio-

nen-Massenseparatoren, die wegen des Strahlenschutzes in abgeschirmten heißen Zellen untergebracht sind, in größeren Mengen gewonnen.

12.5. Einrichtungen zur Handhabung hoher Aktivitäten

Zur Handhabung hoher Aktivitäten von der Größenordnung kCi bis MCi sind speziell eingerichtete „heiße Zellen" erforderlich. Die Größe dieser heißen Zellen richtet sich nach den vorgesehenen Operationen. So werden zur Handhabung und Zerkleinerung von Brennstoffelementen verhältnismäßig große Zellen benötigt. Die Strahlenschutzmaßnahmen richten sich nach der Art der Strahlung. Zur Handhabung hoher γ-Aktivitäten werden Zellen mit dicken Wänden aus Beton oder Schwerbeton (Barytbeton) verwendet. Als Fenster dient meist eine wässerige Lösung hoher Dichte, die einen hohen Absorptionskoeffizienten und gute Strahlenbeständigkeit besitzt, z. B. Zink-

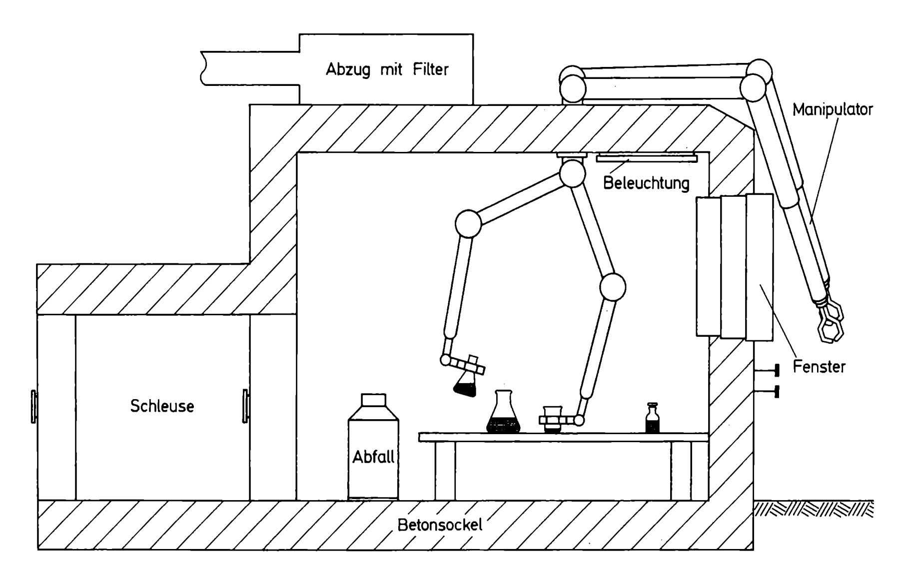


Abb. (12–16) Schema einer „heißen Zelle".

bromidlösung. Das Schema einer heißen Zelle ist in Abb. (12–16) wiedergegeben. Die Bedienung erfolgt von außen mit Hilfe von Manipulatoren. Alle heißen Zellen sind luftdicht abgeschlossen und mit besonderen Luftfiltern versehen. Die mechanischen und elektrischen

Einrichtungen sind den Operationen angepaßt, die in diesen Zellen ausgeführt werden sollen. Die Zufuhr und die Entfernung von Stoffen oder Apparateteilen erfolgt durch Schleusen.

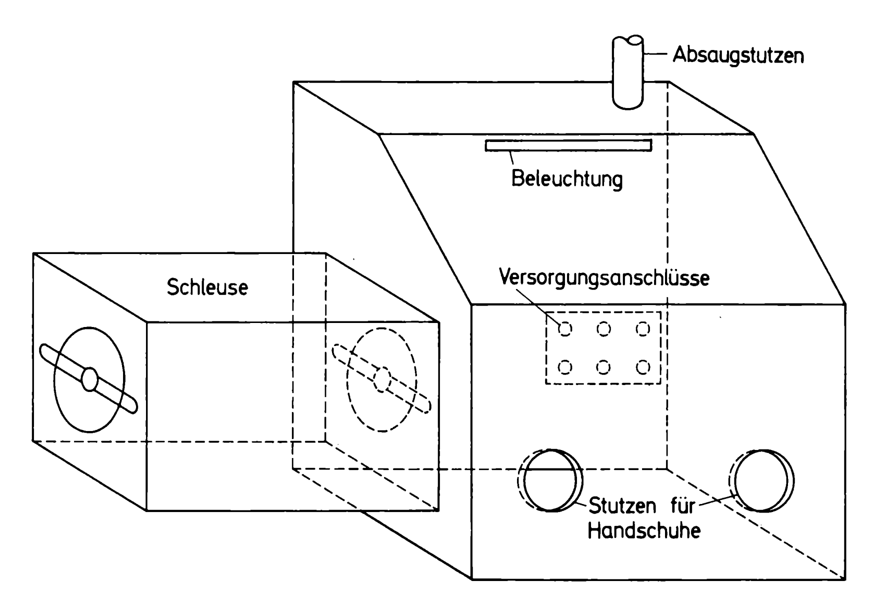


Abb. (12–17) Handschuhkasten (schematisch).

Für reine β- oder α-Strahler genügen dünne Strahlenschutzwände und -fenster. α-Strahler werden im allgemeinen in Handschuhkästen („glove boxes") verarbeitet, die mit einer Unterdruckabsaugung versehen sind (vgl. Abb. (12–17)). Diese Handschuhkästen werden nebeneinander angeordnet, wenn routinemäßig mehrere aufeinanderfolgende Operationen ausgeführt werden. Dabei wird jeder Handschuhkasten für die Ausführung bestimmter Operationen ausgerüstet. Beim Umgang mit größeren Mengen von α-aktiven Stoffen höherer spezifischer Aktivität, z. B. Transplutoniumelementen, spielt die Eigenerwärmung und Strahlenzersetzung infolge der α-Aktivität eine wichtige Rolle. Solche Stoffe können sich durch Eigenerwärmung bis zur Weißglut erhitzen. Glasgefäße werden oft durch Strahlenschäden zerstört.

In großtechnischen Anlagen (z. B. Wiederaufarbeitungsanlagen) müssen die einzelnen Teilschritte weitgehend automatisiert werden, weil die hohen Aktivitäten das Betreten der Anlagen verbieten. Auf diese Weise wird in der Kerntechnik der Übergang zu vollautomatischen Fabriken vollzogen.

Besondere Vorsichtsmaßnahmen sind beim Umgang mit spaltbaren Stoffen erforderlich, damit unter keinen Bedingungen der kritische Zustand, d. h. die Auslösung einer Kettenreaktion, erreicht wird. Beispielsweise vermeidet man in solchen Anlagen Wasserkühlung, weil Wasser als Moderator wirkt und im Falle eines Bruches die Kritikalität stark erhöhen kann.

Literatur zu Kapitel 12

1. I. KAPLAN: Nuclear Physics, 2. Aufl., Addison-Wesley Publ. Comp., Reading 1964.
2. G. FRIEDLANDER, J. W. KENNEDY, J. M. MILLER: Nuclear and Radiochemistry, 2. Aufl., John Wiley and Sons, New York 1964.
3. H. KOUTS: Nuclear Reactors. In: Methods of Experimental Physics. Bd. 5B: Nuclear Physics. Hrsg. L. C. L. YUAN, C. S. WU. Academic Press, New York 1963, S. 590.
4. T. E. COLE, A. M. WEINBERG: Technology of Research Reactors. Annu. Rev. nuclear Sci. **12** (1962) 221.
5. M. H. BLEWETT: Low-Energy Sources. In: Methods of Experimental Physics.Bd. 5 B: Nuclear Physics. Hrsg. L.C.L. YUAN, C. S. WU. Academic Press, New York 1963, S. 580;
   G. D. O'KELLEY: Radioactive Sources, ibid. S. 555;
   M. H. BLEWETT: Medium- and High-Energy Sources, ibid. S. 623.
6. B.T. FELD: The Neutron. In: Experimental Nuclear Physics, Bd. II. Hrsg. E. SEGRÈ. John Wiley and Sons, New York 1953, S. 208.
7. G. CLAUSNITZER, G. DUPP, W. HANLE, P. KLEINHEINS, H. LÖB, K. H. REICH, A. SCHARMANN, H. SCHNEIDER, W. SCHWERTFÜHRER, K. WÖLCKEN: Partikel-Beschleuniger. Thiemig-Taschenbücher Bd. 28. Verlag Karl Thiemig, München 1967.
8. B. S. RATNER: Accelerators of Charged Particles (Übersetzung). The McMillan Company, New York 1964.
9. E. M. MCMILLAN: Particle Accelerators. In: Experimental Nuclear Physics. Bd. III, Hrsg. E. SEGRÈ. John Wiley and Sons, New York 1959, S. 639.
10. M. S. LIVINGSTON, J. P. BLEWETT: Particle Accelerators. McGraw-Hill Book Comp., New York 1962.
11. M. H. BLEWETT: The Electrostatic (Van de Graaff) Generator. In: Methods of Experimental Physics. Bd. 5 B: Nuclear Physics. Hrsg.: L. C. L. YUAN, C. S. WU. Academic Press, New York 1963, S. 584.
12. E. D. COURANT, M. S. LIVINGSTON, H. S. SNEYDER: The Strong-Focusing Synchrotron – A New High Energy Accelerator. Physic. Rev. **88** (1952) 1190.
13. Hot Labs – A Special Report. Nucleonics **12** Nr. 11 (November 1954) 35.
14. N. B. GARDEN, E. NIELSON: Equipment for High Level Radiochemical Processes. Annu. Rev. nuclear Sci. **7** (1957) 47.

Übungen zu Kapitel 12

1. Wie groß ist die Ausbeute an B–12
   a) bei Bestrahlung von Bor natürlicher Isotopenzusammensetzung in einem gepulsten Reaktor bei einer Pulsdauer von 1 ms und einem Neutronenfluß (im Puls) von $2 \cdot 10^{16} \mathrm{cm}^{-2} \mathrm{s}^{-1}$,
   b) bei Bestrahlung in einem Reaktor bei einem Neutronenfluß von $10^{15} \mathrm{cm}^{-2} \mathrm{s}^{-1}$?
   ($\sigma = 0{,}005$ b)

2. Um welchen Faktor wird das Intensitätsverhältnis Neutronenstrahlung : γ-Strahlung erhöht, wenn die Probe in einem Behälter aus Wismut im Reaktor bestrahlt wird und die Wandstärke dieses Behälters 4 cm beträgt? Um welchen Faktor nimmt der Fluß an thermischen Neutronen dabei ab?

3. Wie oft müssen Protonen in einem Zyklotron umlaufen, bis sie eine Energie von 10 MeV erreicht haben, wenn die Spannung zwischen den Elektroden 100 kV beträgt?

4. Wie hoch ist der Neutronenfluß eines Neutronengenerators mit einem Tritiumtarget bei einem Deuteronenstrom von 0,2 mA und einer Deuteronenenergie von 400 keV in einem Abstand von 3 cm vom Target? (Vgl. Abb. (12–14).)

13. Gewinnung und Chemie der Radionuklide

13.1. Gewinnung von Radionukliden in Kernreaktoren

Die meisten der im Handel befindlichen Radionuklide werden in Kernreaktoren hergestellt. Die verschiedenen Bestrahlungs- und Zusatzeinrichtungen in Kernreaktoren, die für die Gewinnung von Radionukliden wichtig sind, haben wir in Abschnitt 12.1. besprochen. Für die Produktion von Radionukliden in größerem Maßstab sind vor allen Dingen die größeren Reaktoren geeignet, die einen hohen Neutronenfluß ($\Phi > 10^{12}\,\mathrm{cm}^{-2}\,\mathrm{s}^{-1}$) und ein hinreichend großes Volumen zur Aufnahme vieler Proben besitzen.

Eine Übersicht über die Reaktionen mit Neutronen gibt Tab. 13.1. Am wichtigsten sind die Reaktionen mit thermischen Neutronen, deren Fluß in den verschiedenen Reaktoren sich zwischen etwa 10^{10} und $10^{14}\,\mathrm{cm}^{-2}\,\mathrm{s}^{-1}$ bewegt. Durch die thermischen Neutronen werden fast ausschließlich (n, γ)-Reaktionen ausgelöst, nur in seltenen Fällen (n, p)- und (n, α)-Reaktionen (vgl. Tab. 13.1.). Diese Reaktionen führen im allgemeinen zu β^--aktiven Nukliden. Da bei (n, γ)-Reaktionen isotope Nuklide entstehen, ist die spezifische Aktivität der Radionuklide in diesem Falle begrenzt. Als Beispiel sei die Bestrahlung von Natriumchlorid zur Gewinnung von Na–24 erwähnt. Dabei finden folgende Kernreaktionen mit thermischen Neutronen statt:

$$\begin{aligned}
&{}^{23}\mathrm{Na}\,(\mathrm{n},\gamma)^{24}\mathrm{Na} && (\sigma = 0{,}53\ \mathrm{b};\ t_{1/2} = 15{,}0\ \mathrm{h})\\
&{}^{35}\mathrm{Cl}\,(\mathrm{n},\gamma)^{36}\mathrm{Cl} && (\sigma = 44\ \mathrm{b};\ t_{1/2} = 3{,}1\cdot 10^{5}\ \mathrm{a})\\
&{}^{35}\mathrm{Cl}\,(\mathrm{n},\mathrm{p})^{35}\mathrm{S} && (\sigma = 0{,}30\ \mathrm{b};\ t_{1/2} = 88\ \mathrm{d})\\
&{}^{37}\mathrm{Cl}\,(\mathrm{n},\gamma)^{38}\mathrm{Cl} && (\sigma = 0{,}40\ \mathrm{b};\ t_{1/2} = 37{,}3\ \mathrm{min})
\end{aligned} \qquad (13.1)$$

Bei einer Bestrahlungszeit von 24 h und einem Fluß an thermischen Neutronen von $\Phi = 10^{13}\,\mathrm{cm}^{-2}\,\mathrm{s}^{-1}$ erhält man nach Gl. (8.79),

Tabelle 13.1.
Übersicht über die Reaktionen mit Neutronen in Kernreaktoren

Reaktion	Zerfallsart der Reaktionsprodukte	Bemerkungen
(n, γ)	vorwiegend β^- sehr selten β^+ oder K	mit fast allen Nukliden möglich; therm. Neutronen geeignet; im allgemeinen hohe Ausbeuten
(n, 2 n)	vorwiegend β^+ gelegentlich β^-	stark endoergisch, nur mit energiereichen Neutronen möglich (Energie > 10 MeV)
(n, p)	fast immer β^-	meist endoergisch (Ausnahmen $^{14}N(n, p)\,^{14}C$, $^{35}Cl(n, p)\,^{35}S$ u. a.); häufig bei kleinen Kernen (A < 40)
(n, α)	vorwiegend β^-	meist endoergisch (Ausnahmen $^{10}B(n, \alpha)\,^{7}Li$ und $^{6}Li(n, \alpha)\,^{3}H$); vorwiegend bei leichten Kernen
(n, f)	Spaltprodukte der therm. Kernspaltung immer β^-; bei Hochenergie-Kernspaltung auch β^+ oder K	bei Ordnungszahlen Z > 90; thermische Kernspaltung bei den Nukliden U–233, U–235 und Pu–239

Tabelle 13.2.
Spezifische Aktivität und Verhältnis der aktiven zu den inaktiven Atomen bei der Bestrahlung von NaCl mit thermischen Neutronen in einem Reaktor ($\Phi = 10^{13}$ cm^{-2} s^{-1}, Bestrahlungszeit 24 h)

Radionuklid	Spez. Aktivität in mCi/g	Verhältnis der aktiven zu den inaktiven Atomen $*N : N$
^{24}Na	991	$1 : 3{,}6 \cdot 10^{6}$
^{36}Cl	0,0006	$1 : 3{,}5 \cdot 10^{4}$
^{38}Cl	273	$1 : 3{,}2 \cdot 10^{8}$
^{35}S	5	trägerfrei

$$A_S = 1{,}63 \cdot 10^{13} \frac{\sigma \Phi H}{\mathrm{M}} (1 - e^{-\lambda t}), \tag{13.2}$$

für die spezifische Aktivität A_S der Radionuklide die in Tab. 13.2. aufgeführten Werte. Nur S–35 liegt in trägerfreier Form vor, d. h. frei von inaktivem Schwefel. Alle anderen Radionuklide sind mit den inaktiven Isotopen vermischt, d. h. nicht trägerfrei. Solche Rechnungen wie die vorliegende sind immer erforderlich, wenn man Radionuklide erzeugen will. Ob die spezifische Aktivität ausreichend ist, hängt von der Aufgabenstellung ab. Die spezifische Aktivität kann durch Wahl des Neutronenflusses und Variation der Bestrahlungsdauer in gewissen Grenzen verändert werden.

Erheblich günstiger im Hinblick auf die spezifische Aktivität liegen die Verhältnisse, wenn durch eine (n, γ)-Reaktion Radionuklide mit kurzer Halbwertzeit entstehen, die sich durch β^--Zerfall in die gewünschten Radionuklide umwandeln. Ein praktisch wichtiges Beispiel ist die Gewinnung von J–131 durch Bestrahlung von Tellur. Dabei sind folgende Kernreaktionen von Interesse:

$$\begin{array}{l} {}^{130}\mathrm{Te}(\mathrm{n},\gamma)\,{}^{131\mathrm{m}}\mathrm{Te} \xrightarrow[30\,\mathrm{h}]{\mathrm{I.\,U.}} {}^{131}\mathrm{Te} \xrightarrow[25\,\mathrm{min}]{\beta^-,\gamma} {}^{131}\mathrm{J} \xrightarrow[8\,\mathrm{d}]{\beta^-,\gamma} \\ (H = 0{,}345) \\[2ex] {}^{128}\mathrm{Te}(\mathrm{n},\gamma)\,{}^{129\mathrm{m}}\mathrm{Te} \xrightarrow[34\,\mathrm{d}]{\mathrm{I.\,U.}} {}^{129}\mathrm{Te} \xrightarrow[69\,\mathrm{min}]{\beta^-,\gamma} {}^{129}\mathrm{J} \xrightarrow[1{,}7 \cdot 10^7\,\mathrm{a}]{\beta^-,\gamma} \\ (H = 0{,}318) \\[2ex] {}^{126}\mathrm{Te}(\mathrm{n},\gamma)\,{}^{127\mathrm{m}}\mathrm{Te} \xrightarrow[109\,\mathrm{d}]{\mathrm{I.\,U.}} {}^{127}\mathrm{Te} \xrightarrow[9{,}4\,\mathrm{h}]{\beta^-} {}^{127}\mathrm{J}\ (\mathrm{stabil}) \\ (H = 0{,}187) \end{array} \tag{13.3}$$

In manchen Fällen führen die (n, γ)-Reaktionen zu den Kernisomeren, in anderen Fällen direkt zum Grundzustand. Ebenso zerfallen die Kernisomeren zum Teil direkt durch β^--Umwandlung in das Tochternuklid, ohne vorher in den Grundzustand überzugehen. Aus den Reaktionsgleichungen (13.3) folgt, daß es zweckmäßig ist, das bestrahlte Tellur vor der Abtrennung des Jods einige Tage liegen zu lassen, damit die Umwandlung in J–131 möglichst vollständig ist. Längere Lagerungszeit wiederum ist nicht sinnvoll, weil das gewünschte J–131 dann teilweise wieder zerfällt; außerdem steigt dabei auch der Gehalt an dem langlebigen J–129 an. Die Abtrennung des Jods vom Tellur erfolgt meist durch Destillation. Zunächst wird das Tellur mit Bichromat und Schwefelsäure zur Tellursäure und das Jod zu Jodat oxydiert. Durch Reduktion mit Oxalsäure erhält man Jod, das in eine Vorlage destil-

liert wird, die etwas verdünnte Natronlauge und eine Spur Natriumsulfit zur Reduktion des Jods oder etwas Natriumthiosulfatlösung enthalten kann. Auf diese Weise wird eine trägerfreie Jodidlösung gewonnen.

Auch Szilard-Chalmers-Reaktionen können zur Gewinnung von trägerfreien Radionukliden durch (n, γ)-Reaktionen herangezogen werden. Hierbei bieten sich vielfältige Möglichkeiten an: eine Auswahl ist in Tab. 9.6. zusammengestellt. Als Beispiel sei die Gewinnung von Cu–64 höherer spezifischer Aktivität durch Bestrahlung von Kupferphthalocyanin in einem Reaktor genannt. Das Kupfer, das im Phthalocyanin-Komplex substitutionsinert gebunden ist, fliegt infolge der Kernreaktion $^{63}Cu\,(n,\gamma)\,^{64}Cu$ aus der komplexen Bindung heraus. Nach der Bestrahlung wird der Komplex in konzentrierter Schwefelsäure aufgelöst und durch Zugabe von Wasser wieder ausgefällt. Das Cu–64 befindet sich zu einem großen Prozentsatz in der Lösung und kann durch weitere Operationen — z. B. mit einem Ionenaustauscher — von der überschüssigen Schwefelsäure abgetrennt werden. Es wird von den inaktiven Kupferionen begleitet, die unter dem Einfluß der Strahlung durch Zersetzung des Komplexes entstanden sind. Die spezifische Aktivität ist jedoch so hoch, daß das Kupfer als praktisch trägerfrei angesprochen werden kann.

Die Gewinnung von Radionukliden mit thermischen Neutronen durch (n, p)- und (n, α)-Reaktionen ist in den folgenden Fällen möglich:

$$^{3}He\,(n,p)\,^{3}H \quad (\sigma = 5330\ b;\ t_{1/2} = 12{,}26\ a) \tag{13.4}$$

$$^{14}N\,(n,p)\,^{14}C \quad (\sigma = 1{,}81\ b;\ t_{1/2} = 5730\ a) \tag{13.5}$$

$$^{33}S\,(n,p)\,^{33}P \quad (\sigma = 0{,}0023\ b;\ t_{1/2} = 25\ d) \tag{13.6}$$

$$^{35}Cl\,(n,p)\,^{35}S \quad (\sigma = 0{,}30\ b;\ t_{1/2} = 88\ d) \tag{13.7}$$

$$^{45}Sc\,(n,p)\,^{45}Ca \quad (\sigma = 0{,}057\ b;\ t_{1/2} = 165\ d) \tag{13.8}$$

$$^{6}Li\,(n,\alpha)\,^{3}H \quad (\sigma = 953\ b;\ t_{1/2} = 12{,}26\ a) \tag{13.9}$$

Da die Radionuklide in diesen Fällen nicht isotop sind, liegen sie stets in trägerfreier Form vor. Die chemische Abtrennung bereitet keine grundsätzlichen Schwierigkeiten.

Die größte Bedeutung besitzt die Gewinnung von C–14 nach Gl. (13.5). Wegen der großen Halbwertzeit des C–14 sind lange Bestrah-

lungszeiten notwendig, um hinreichend hohe Aktivitäten zu erhalten. In der Praxis wird meist eine Bestrahlungszeit von etwa 1 Jahr gewählt (vgl. Abschn. 8.7.). N–14 wurde zunächst in Form von Nitraten vorgelegt (Ammoniumnitrat oder Kaliumnitrat). Nitrate zersetzen sich jedoch unter dem Einfluß der Strahlung, insbesondere der γ-Strahlung im Reaktor, in merklichem Umfang. Diese Zersetzung macht sich bei längerer Bestrahlungszeit besonders stark bemerkbar. Heute verwendet man vorzugsweise thermisch stabile Nitride wie AlN oder Be_3N_2. Nach Beendigung der Bestrahlung wird das Nitrid im Sauerstoffstrom auf etwa 800 °C erhitzt. Unter diesen Bedingungen entweicht das gebildete C–14 als $^{14}CO_2$. Es kann in einer mit Bariumhydroxid gefüllten Vorlage in Bariumcarbonat überführt werden. Der Handelswert von 1 g trägerfreiem $Ba^{14}CO_3$ beträgt z. Zt. etwa DM 8000,—; das ist ungefähr das tausendfache des Wertes von 1 g Gold. In trägerfreier Form ist die spezifische Aktivität des C–14 4,46 Ci/g oder 62 mCi/mMol. In der Praxis wird eine spezifische Aktivität bis zu etwa 40 mCi/mMol erreicht. Aus $Ba^{14}CO_3$ bzw. $^{14}CO_2$ wird eine große Zahl von ^{14}C-markierten organischen Verbindungen hergestellt. Da bei diesen Synthesen erhebliche Verluste auftreten, steigt der Preis der markierten Verbindungen, bezogen auf die Aktivität an C–14, um etwa den Faktor 10 bis 100 an. Aus diesem Grunde sind einfache Reaktionen, die mit hoher Ausbeute verlaufen, in der Chemie des C–14 besonders wichtig.

Tritium, das nach der Reaktion (13.9) hergestellt wird, ist im Gegensatz zu C–14 verhältnismäßig preiswert. Es kommt als Tritiumgas mit einem Gehalt bis zu etwa 90% Tritium oder als tritiertes Wasser in den Handel. Der Preis beträgt zur Zeit etwa DM 8,–– pro Ci (für größere Mengen). 1 Ci Tritium entspricht einer Menge von 0,103 mg und nimmt als Tritiumgas unter Normalbedingungen nur ein Volumen von 0,38 cm^3 ein. Große Mengen Tritium werden für die Produktion von Wasserstoffbomben hergestellt. Verhältnismäßig kleine Mengen verwendet man für die Markierung von organischen Verbindungen.

Die Kernspaltung mit thermischen Neutronen führt zu einer großen Anzahl von verschiedenen Radionukliden (vgl. Abschn. 11.8. und 11.9.). Ein Teil dieser Spaltprodukte wird durch spezielle Trennverfahren isoliert und in den Handel gebracht. Tab. 13.3. gibt eine Übersicht über die auf diese Weise zugänglichen Radionuklide. Es ist bei der Abtrennung der Spaltprodukte allerdings oft schwierig, die Reinheitsanforderungen zu erfüllen, die z. B. im Hinblick auf die Verwendung in der Medizin erforderlich sind.

Tabelle 13.3.
Radionuklide, die durch Abtrennung aus Spaltprodukten erhalten werden können

Radionuklid	Trennverfahren (Arbeitsprinzip)
^{85}Kr, ^{133}Xe	Austreibung der Edelgase aus der siedenden Spaltproduktlösung mit einem Inertgas; nach Entfernung des Wasserdampfes, CO_2, O_2 und der Kohlenwasserstoffe Adsorption der Edelgase an Aktivkohle. Gewinnung von reinem Kr oder Xe durch wiederholte fraktionierte De- und Adsorption.
^{90}Sr	Gemeinsame Fällung von Sr und Ba als Nitrate aus stark salpetersaurer Lösung (Calciumnitrat bleibt in Lösung), Trennung von Sr und Ba durch Lösen der Nitrate und Fällung als Oxalate; oder Abtrennung des Ba als Chlorid durch Fällung mit HCl/Äther bzw. als $BaCrO_4$ und Gewinnung des Sr durch Fällung in ammoniakalischer Lösung als SrC_2O_4.
^{95}Zr	a) Adsorption an Silicagel, Elution mit Schwefel- und Salpetersäure zur Abtrennung anderer Spaltprodukte und Elution von Zr und Nb mit 0,5 m Oxalsäure; b) Extraktion des Zr als α-Thenoyltrifluoraceton-Chelat in Benzol aus salpetersaurer Lösung, Rückextraktion mit 2 n HF und Fällung als $BaZrF_6$, Abtrennung des Ba als Sulfat und Fällung des Zr als Salz der Mandelsäure.
^{99}Mo	a) Fällung des Mo mit Benzoinoxim (gelöst in Alkohol) aus saurer Lösung, Auflösen in Ammoniak; zugegebenes Fe^{III} dient als Träger zur Mitfällung der anderen Spaltprodukte; aus dem angesäuerten Filtrat wird Mo als $PbMoO_4$ gefällt; b) Austausch an Dowex–1 aus 5–9 n HCl-Lösung, Elution der anderen Spaltprodukte mit 6 n HCl, 0,1 n HCl–0,05 n HF und 3 n NH_4OH, Elution des Mo mit 6 n Ammoniumacetatlösung, Reinigung des Mo im Eluat durch $Fe(OH)_3$-Fällung und Ausfällung des Mo mit Benzoinoxim; c) Extraktion des Mo mit Äther aus 6 n HCl-Lösung, Rückextraktion mit Wasser; Abtrennung anderer Spaltprodukte durch $Fe(OH)_3$-Fällung; Mo wird aus dem angesäuerten Filtrat mit 8–Hydroxychinolin gefällt.
^{99}Tc	a) Selektive Fällung des Tc als Tetraphenylarsoniumpertechnetat, $(C_6H_5)_4\,AsTcO_4$; b) Extraktion des Tc als $(C_6H_5)_4AsTcO_4$ aus neutraler Lösung in Gegenwart von H_2O_2 in $CHCl_3$ mit hohem Verteilungskoeffizienten; Rückextraktion mit 0,2 n $HClO_4$ oder 12 n H_2SO_4 ist möglich.

Fortsetzung Tabelle 13.3.

Radionuklid	Trennverfahren (Arbeitsprinzip)
^{103}Ru	a) Oxydation des Ru in schwefelsaurer Lösung zu RuO_4 und Destillation in eine salzsaure, H_2O_2 enthaltende Lösung (durch H_2O_2 erfolgt Reduktion zu Ru^{VI}); Fällung als Sulfid; b) Destillation von RuO_4 aus $HClO_4$-haltiger Lösung (Oxydation des Ru zu Ru^{VIII}) in Gegenwart von $NaBiO_3$ (Oxydation der Halogene zu höheren Oxydationsstufen) in eine alkalische Lösung; anschließend in saurer Lösung Reduktion mit Mg zu Ru-Metall; c) Extraktion des RuO_4 aus saurer Lösung in CCl_4; Fällung als RuO_2 durch Zugabe von Methanol.
^{131}J	Reduktion zu J_2, Wasserdampfdestillation, nach Ansäuern der Vorlage Extraktion mit CCl_4; Reinigung durch mehrmalige Reduktion und Oxydation: Rückextraktion mit $NaHSO_3$ ($J_2 \rightarrow 2\,J^-$), Extraktion in CCl_4 nach Oxydation des J^- zu J_2.
^{137}Cs	a) Extraktion als Cäsiumtetraphenylborat, $Cs(C_6H_5)_4B$ in Amylacetat; Rückextraktion mit 3 n HCl; b) Fällung des Cs als Alaun aus einer von Alkali, Ruthenium und Seltenen Erden befreiten Lösung; zur Reinigung mehrmaliges Umfällen.
^{141}Ce ^{144}Ce	a) Selektive Extraktion als Ce^{IV} aus salpetersaurer Lösung mit Tributylphosphat bzw. mit Di–2–äthylhexylphosphat in Heptan (hoher Verteilungskoeffizient); b) Fällung des Ce^{IV} als $CeHJO_6 \cdot H_2O$; damit Abtrennung von anderen Seltenen Erden und Thorium.
^{140}Ba	Fällung als $BaCl_2 \cdot H_2O$ aus einer kalten, sauren Lösung mit einem HCl-Äther-Gemisch (5 Teile konz. HCl – 1 Teil Äther); Reinigung durch mehrmaliges Auflösen und Fällen.
^{147}Pm	Trennung der Seltenen Erden an Dowex–50, Elution mit Milchsäure zunehmender Konzentration (0,85 m; 0,90 m; 0,95 m; 1,0 m) bei pH 3 und erhöhter Temperatur (z. B. 87 °C).

Reaktionen mit harten Neutronen, (n, 2n)-, (n, p)- und (n, α)-Reaktionen, spielen für die Gewinnung von Radionukliden in Kernreaktoren nur eine untergeordnete Rolle. Dies beruht insbesondere darauf, daß der Fluß an energiereichen Neutronen verhältnismäßig gering ist,

wenn nicht besondere Vorkehrungen getroffen werden, z. B. Bestrahlung in einem Brennstoffelement oder Zusatz von Lithiumdeuterid (vgl. Abschn. 12.1.2.).

Gewisse praktische Bedeutung besitzen die folgenden Reaktionen, deren Schwellenenergie etwa 1 MeV beträgt:

$$^{32}S\,(n, p)\,^{32}P, \qquad (13.10)$$

$$^{59}Co\,(n, p)\,^{59}Fe. \qquad (13.11)$$

Der Wirkungsquerschnitt für diese Reaktionen ist in Abb. (13–1) als Funktion der Energie der Neutronen aufgezeichnet. P–32 und Fe–59 können so in hoher spezifischer Aktivität hergestellt werden; die Ausbeute an P–32 ist verhältnismäßig hoch, die an Fe–59 geringer.

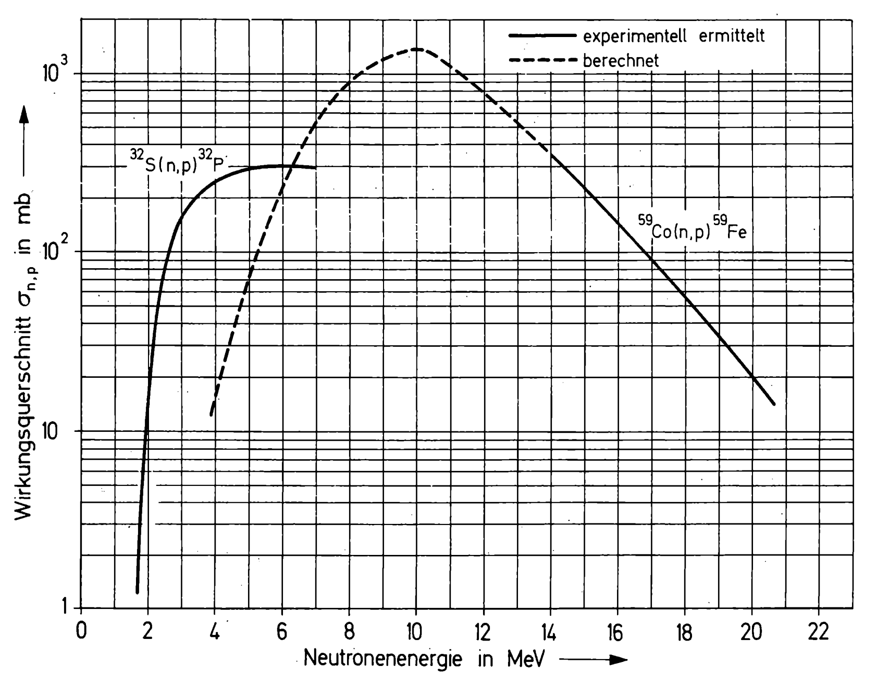


Abb. (13–1) Wirkungsquerschnitte für die Reaktionen $^{32}S(n, p)^{32}P$ und $^{59}Co(n, p)^{59}Fe$ als Funktion der Energie der Neutronen. Nach E. D. KLEMA u. A. O. HANSON: Physic. Rev. **73** (1948) 106; J. M. F. JERONYMO, G. S. MANI, J. OLKOWSKY, A. SADEGHI u. C. F. WILLIAMSON: Nuclear Physics **47** (1963) 157.

Die Vorbereitung der Proben für die Bestrahlung im Reaktor ist im allgemeinen ziemlich einfach. Wichtig ist die Kenntnis der im Reaktor herrschenden Temperatur. Feste Stoffe können in den meisten Fällen

in kleinen Beutelchen aus Polyäthylen eingeschweißt werden. Dabei ist es zweckmäßig, aus pulverförmigen Substanzen Preßlinge herzustellen, um die Handhabung der bestrahlten Proben zu vereinfachen. Flüssige und gasförmige Stoffe sowie solche festen Verbindungen, die sich bei der Bestrahlung zersetzen (z. B. unter Bildung von Halogenen), werden meist in Quarzglas eingeschmolzen. Quarzglas hat den Vorteil, daß es praktisch nicht aktiviert wird. Es ist auch dann angebracht, wenn im Reaktor eine erhöhte Temperatur herrscht. Zum Einbringen der Proben in den Reaktor werden im allgemeinen kleine verschraubbare zylindrische Behälter aus Aluminium von 1 Zoll Durchmesser verwendet, weil Aluminium ebenfalls nur in geringem Umfang aktiviert wird (Al–28 ist sehr kurzlebig). Für den Transport stark aktiver Proben benutzt man meist Bleibehälter, zum Öffnen der Aluminiumbehälter besondere Einrichtungen mit der Möglichkeit der Fernbedienung.

Bei stark absorbierenden Stoffen (z. B. Cadmium oder Lanthaniden) spielt die Selbstabsorption der Neutronen eine Rolle. Sie kann sich schon bei Proben von 0,1 mg bemerkbar machen. Der Neutronenfluß nimmt dann zum Innern der Probe hin kontinuierlich ab. Man bezeichnet diesen Effekt auch als Selbstabschirmung. Diese Selbstabschirmung wird in der Praxis am einfachsten dadurch bestimmt, daß man verschiedene Mengen unter den gleichen Bedingungen bestrahlt und feststellt, in welchem Maße die spezifische Aktivität abnimmt.

13.2. Gewinnung von Radionukliden in Beschleunigern

Beschleuniger haben im Hinblick auf die Erzeugung von Radionukliden gegenüber Kernreaktoren den Vorteil, daß sie vielseitiger verwendbar sind. So können γ-Quanten, Protonen, Deuteronen, α-Teilchen und andere Ionen als Geschosse verwendet werden. Außerdem ist die Energie der Geschosse in weiten Grenzen variierbar. Neutronen können in Beschleunigern indirekt durch Kernreaktionen erzeugt werden (vgl. Abschn. 12.3.). Für die Produktion von Radionukliden in größerem Maßstab besitzen Beschleuniger allerdings den wesentlichen Nachteil der hohen Betriebskosten. Deshalb ist man bestrebt, die in Beschleunigern möglichen Reaktionen durch äquivalente Reaktionen in Kernreaktoren zu ersetzen, z. B. (d, p)- durch (n, γ)-Reaktionen und (d, t)- durch (n, 2n)-Reaktionen.

Tab. 13.4. gibt eine Übersicht über die wichtigsten Merkmale der Kernreaktionen, die mit Beschleunigern durchgeführt werden können.

Tabelle 13.4.
Übersicht über die Reaktionen in Beschleunigern

Reaktion	Zerfallsart der Reaktionsprodukte	Bemerkungen
(p,γ)	β^+ oder K selten β^-	Bei leichten Kernen oft scharfe Resonanzstellen; konkurrierend können (p, n)-Reaktionen auftreten
(p,n)	β^+ oder K gelegentlich β^-	meist endoergisch; Schwellenenergie 2–4 MeV
(p,α)	—	selten
(d,n)	β^+ oder K gelegentlich β^-	exoergisch; von den durch Deuteroneneinfang induzierten Reaktionen die höchsten Ausbeuten
$(d,2n)$	β^+ oder K selten β^-	Schwellenenergie 5–10 MeV; bei höheren Energien (d, 3n)- und (d, 4n)-Reaktionen
(d,p)	meist β^-	im allgemeinen recht hohe Wirkungsquerschnitte; mit 14 MeV-Deuteronen praktisch bei allen Elementen durchführbar; bei leichten Kernen (niedrige Potentialschwelle) Einfang des Deuterons und anschließend Aussendung eines Protons; bei schwereren Kernen Oppenheimer-Phillips-Reaktion
(d,α)	β^+ oder β^-	meist exoergisch; häufig bei leichten Kernen, z. B. $^6Li(d,\alpha)\,\alpha$ und $^7Li(d,\alpha)\,\alpha + n$
(α,n)	β^+ oder K selten β^-	wird zur Gewinnung von Neutronen ausgenutzt; Ausbeuten nehmen wegen der Coulombschen Abstoßung mit zunehmender Ordnungszahl des Targets ab; bei höheren Energien $(\alpha, 2n)$- und $(\alpha, 3n)$-Reaktionen
(α,p)	meist β^- gelegentlich β^+ oder K	ebenfalls hohe Schwellenenergie wegen Coulombscher Abstoßung; bei hoher Ordnungszahl nur mit hochenergetischen α-Teilchen möglich
(γ,n)	β^+ gelegentlich β^-	immer endoergisch; die Schwellenenergie entspricht der Bindungsenergie des Neutrons im Kern; mit wachsender γ-Energie auch $(\gamma, 2n)$- und $(\gamma, 3n)$-Reaktionen

Tabelle 13.5.
Reaktionen mit Deuteronen zur Gewinnung von Radionukliden

Target	Kernreaktion	Ausbeute in $\frac{\mu Ci^{*)}}{\mu A\ h}$		
		8 MeV	14 MeV	19 MeV
Li, LiF, $LiBO_2$	$^{6}Li(d, n)^{7}Be$	–	niedrig	2
B_2O_3	$^{10}B(d, n)^{11}C$	500	485	–
Mg, MgO	$^{24}Mg(d, \alpha)^{22}Na$	–	1,8 – 1,0	–
Cr	$^{50}Cr(d, \alpha)^{48}V$	–	niedrig	–
Cr	$^{52}Cr(d, 2n)^{52}Mn$	–	80	–
Fe	$^{56}Fe(d, \alpha)^{54}Mn$	–	1,0	–
Manganlegierung	$^{55}Mn(d, 2n)^{55}Fe$	–	0,7	0,02
Fe	$^{56}Fe(d, 2n)^{56}Co$	–	hoch	–
Fe	$^{56}Fe(d, n)^{57}Co$	–	hoch	5,0
Fe	$^{57}Fe(d, n)^{58}Co$	–	hoch	–
Cu	$^{65}Cu(d, 2n)^{65}Zn$	–	3,5	–
Germaniumlegierung	$^{74}Ge(d, 2n)^{74}As$	–	2	10
Arsenlegierung	$^{75}As(d, 2n)^{75}Se$	–	hoch	–
NaBr	$^{79}Br(d, 2n)^{79}Kr$	–	hoch	–
$SrCO_3$	$^{88}Sr(d, 2n)^{88}Y$	–	38	–
Pd	$^{107}Pd(d, n)^{106}Ag$	–	mittel	–
Te	$^{130}Te(d, 2n)^{130}J$	–	900	–
NaJ	$^{127}J(d, 2n)^{127}Xe$	–	mittel	–
Au	$^{197}Au(d, 2n)^{197}Hg$	–	800	–

*) Anmerkung: Die Angaben gelten für dicke Targets
Werte aus:
J. W. IRVINE: Nucleonics **3** (2) (1948) 5.
J. W. IRVINE: J. chem. Soc. [London] 1949, Suppl. Issue Nr. 2, 356.
W. M. GARRISON, J. G. HAMILTON: UCRL 1067 (1950).

Im Gegensatz zu den in Kernreaktoren durch Neutroneneinfang erzeugten Radionukliden sind die mit Beschleunigern gewonnenen Nuklide meist β^+-aktiv oder K-Strahler. Wenn solche Radionuklide erwünscht sind, müssen sie deshalb im allgemeinen mit einem Beschleuniger hergestellt werden.

Als Geschosse werden bevorzugt Deuteronen verwendet, weil sie infolge der größeren Wirkungsquerschnitte höhere Ausbeuten liefern als Protonen und in verhältnismäßig einfachen Ionenquellen leichter erzeugt werden können als α-Teilchen. In Tab. 13.5. sind einige Reaktionen mit Deuteronen zusammengestellt, die für die Gewinnung von Radionukliden Bedeutung gewonnen haben.

C–11 kann durch verschiedene Reaktionen erzeugt werden:

$$\left.\begin{array}{l} {}^{11}B\,(p,n)\,{}^{11}C \\ {}^{10}B\,(d,n)\,{}^{11}C \\ {}^{12}C\,(n,2n)\,{}^{11}C \end{array}\right\} \xrightarrow[20{,}3\,\mathrm{min}]{\beta^+\,(0{,}97\,\mathrm{MeV})} {}^{11}B \qquad \begin{array}{r}(13.12)\\(13.13)\\(13.14)\end{array}$$

In der Praxis kommen häufig folgende Reaktionen zur Anwendung:

$${}^{12}C\,(\gamma,n)\,{}^{11}C,$$

$${}^{12}C\,(p,pn)\,{}^{11}C,$$

$${}^{14}N\,(p,\alpha)\,{}^{11}C,$$

$${}^{16}O\,(p,pn\alpha)\,{}^{11}C.$$

Bei den Reaktionen (13.12) und (13.13) entsteht C–11 in trägerfreier Form, bei der Reaktion (13–14) nicht. C–11 wird für reaktionskinetische Untersuchungen verwendet. Gegenüber C–14 besitzt es den Vorteil der höheren Zerfallsenergie und der höheren spezifischen Aktivität, aber den Nachteil der kurzen Halbwertzeit.

Auch für die Herstellung von F–18 bieten sich mehrere Reaktionen an

$$\left.\begin{array}{l} {}^{18}O\,(p,n)\,{}^{18}F \\ {}^{17}O\,(d,n)\,{}^{18}F \\ {}^{16}O\,(t,n)\,{}^{18}F \\ {}^{19}F\,(\gamma,n)\,{}^{18}F \end{array}\right\} \xrightarrow[1{,}8\,\mathrm{h}]{\beta^+\,(0{,}64\,\mathrm{MeV})} {}^{18}O \qquad \begin{array}{r}(13.15)\\(13.16)\\(13.17)\\(13.18)\end{array}$$

Die Reaktionen (13.15) und (13.17) spielen für die Bestimmung von Sauerstoff durch Aktivierungsanalyse eine Rolle. Der (γ, n)-Reaktion (13.18) äquivalent ist die $(n, 2n)$-Reaktion ${}^{19}F\,(n,2n)\,{}^{18}F$.

Die Wirkungsquerschnitte für die Herstellung von Na–22 durch die Kernreaktion

$${}^{24}Mg\,(d,\alpha)\,{}^{22}Na \qquad (13.19)$$

sowie für die Herstellung von Na–24 durch die Kernreaktion

$${}^{26}Mg\,(d,\alpha)\,{}^{24}Na \qquad (13.20)$$

sind in Abb. (13–2) als Funktion der Energie der Deuteronen aufgezeichnet. In Abb. (13–3) sind die Wirkungsquerschnitte für verschie-

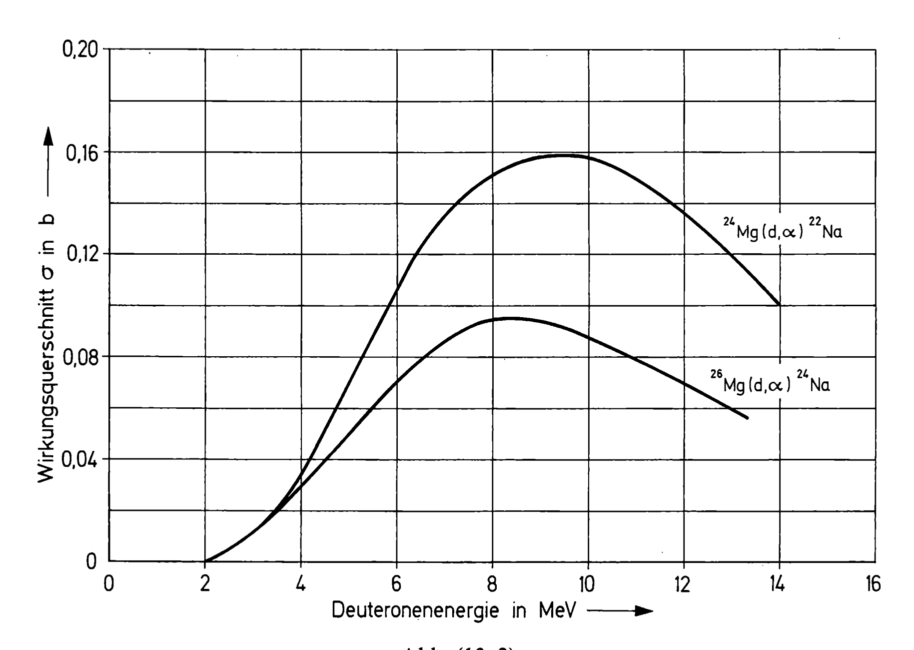


Abb. (13–2)
Wirkungsquerschnitte für die Reaktionen $^{24}Mg(d,\alpha)^{22}Na$ und $^{26}Mg(d,\alpha)^{24}Na$ als Funktion der Energie der Deuteronen. Nach J. W. IRVINE u. E. T. CLARKE: J. chem. Physics **16** (1948) 686.

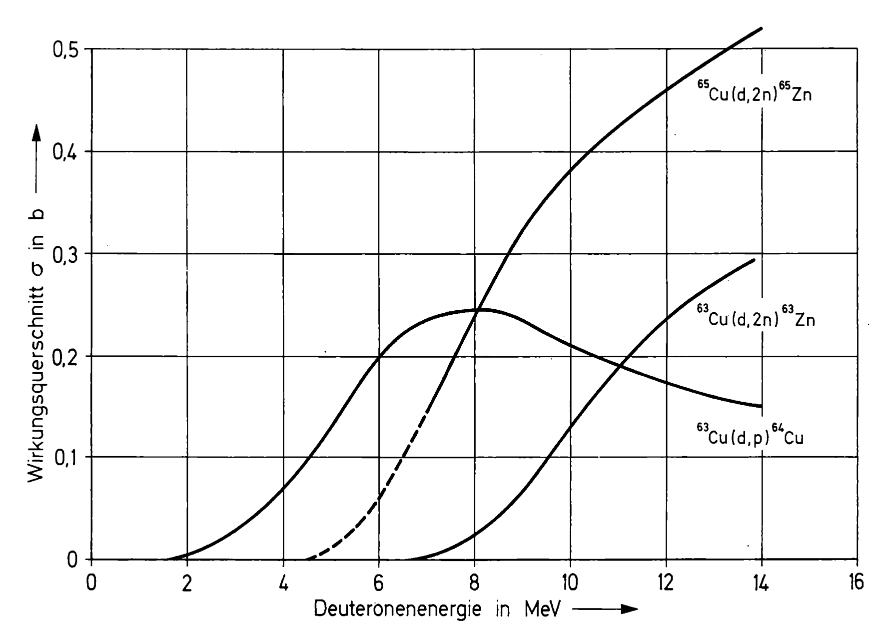


Abb. (13–3) Wirkungsquerschnitte für verschiedene Kernreaktionen mit Deuteronen an Kupfer. Nach J. W. IRVINE, jun.: J. chem. Soc. [London] **5** (1949) 356.

dene Kernreaktionen von Deuteronen mit Kupfer angegeben, die für die Gewinnung von Zinkisotopen wichtig sind.

(d, p)-Reaktionen, die im allgemeinen recht hohe Wirkungsquerschnitte besitzen, sind für die Gewinnung von Radionukliden uninteressant, da sie den im Reaktor mit guten Ausbeuten ablaufenden (n, γ)-Reaktionen äquivalent sind.

(γ, n)-Reaktionen besitzen Interesse für die Herstellung von isotopen Radionukliden mit Neutronenunterschuß (β^+- bzw. K-Strahlern). Einige Beispiele für solche Reaktionen sind in Tab. 13.6. zusammengestellt.

Tabelle 13.6.
Beispiele für die Gewinnung von Radionukliden durch (γ, n)-Reaktionen

Target	Durch (γ, n)-Reaktion erzeugt	$t_{1/2}$	$E\gamma_{max}$ (Resonanzenergie) in MeV	$\sigma(\gamma, n)_{max}$ (bei der Resonanzenergie) in barn
TiO_2	^{45}Ti	3,1 h	–	–
$Co(NO_3)_2 \cdot 6\,H_2O$	^{58}Co	71 d	16,9	0,13
$AgNO_3$	^{106}Ag	8,4 d	14,0	0,24
$KJO_3(LiJ)$	^{126}J	13 d	15,2	0,45
Cs_2CO_3	^{132}Cs	6,5 d	–	–
$TlNO_3$	^{202}Tl	12 d	$\approx$ 17	0,092
$Pb(NO_3)_2$	^{203}Pb	51 h	–	–

Werte aus:
H. Elias: Radiochimica Acta **6** (1966) 109.
R. Montalbetti, L. Katz, J. Goldenberg: Physic. Rev. **91** (1953) 667.
M. Mutsuro: J. physic. Soc. Japan **14** (1959) 1649.
J. Erö, L. Keszthelyi: Nuclear Physics **2** (1956/57) 371.
J. Moffatt, D. Reitmann: Nuclear Physics **65** (1965) 135.

Die Wirkungsquerschnitte liegen meist in der Größenordnung 1 bis 100 mb; sie steigen mit der Energie der γ-Quanten an (Abb. (13–4)). Mit wachsender γ-Energie steigt auch der Anteil der (γ, 2n)-, (γ, 3n)- und (γ, 4n)-Reaktionen. Die spezifische Aktivität der Radionuklide, die durch diese Kernreaktionen gewonnen werden, ist verhältnismäßig niedrig, es sei denn, daß Trennungen nach der Methode von Szilard und Chalmers ausgeführt werden.

Bei der Bestrahlung in einem Beschleuniger unterscheidet man die „innere" und die „äußere" Bestrahlung. Im einen Falle wird das Tar-

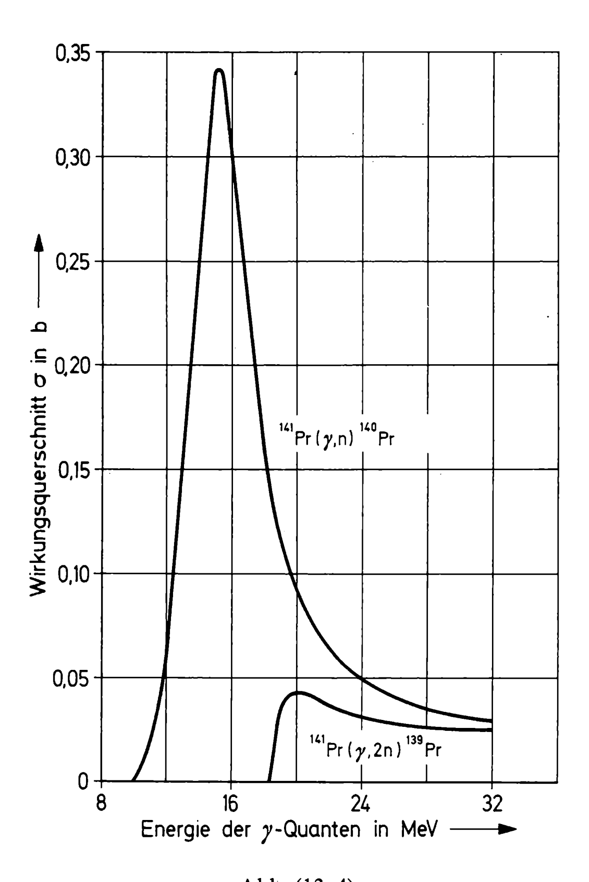


Abb. (13–4)
Wirkungsquerschnitte für die Reaktionen $^{141}Pr(\gamma, n)^{140}Pr$ und $^{141}Pr(\gamma, 2n)^{139}Pr$ als Funktion der γ-Energie. Nach J. H. CARVER u. W. TURCHINETZ: Proc. physic. Soc. **73** (1959) 110.

get in den Beschleuniger eingeführt, im anderen Falle wird der Strahl aus dem Beschleuniger herausgelenkt, so daß das Target außerhalb bestrahlt werden kann. Beide Möglichkeiten sind in Abb. (13–5) skizziert. In beiden Fällen treten durch die Absorption der Strahlung beträchtliche Wärmeleistungen auf, die eine intensive Kühlung erforderlich machen. Ein Teilchenstrom von 1 μA und einer Energie von 1 MeV bedeutet beispielsweise eine Leistung von 10^{-6} A · 10^{6} V = 1 W. Die Ströme liegen meist in der Größenordnung 100 μA, die Energien der Teilchen in der Größenordnung 10 MeV. Geht man davon aus, daß die Teilchen im Target vollständig absorbiert werden, so ist die Leistung 1 kW. Diese muß unbedingt durch eine gute Kühlung abgeführt werden, wenn eine Überhitzung oder ein Wegschmelzen des Targets

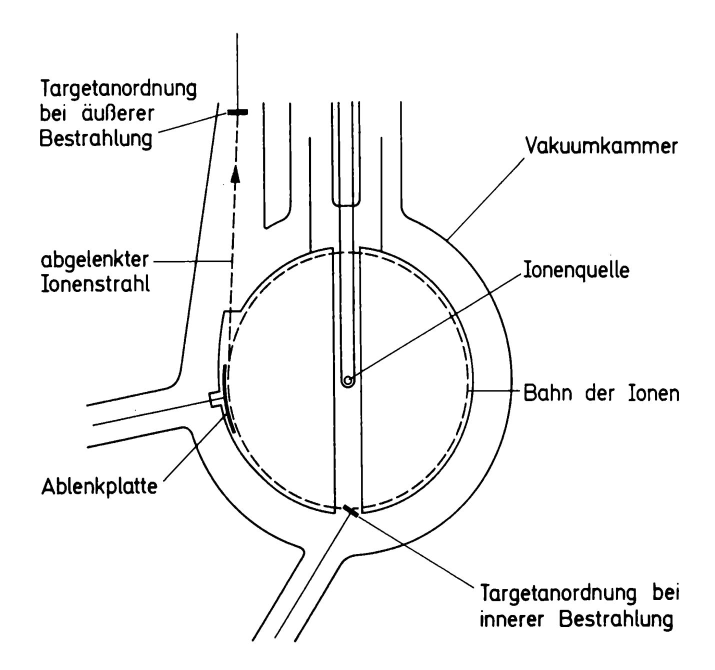


Abb. (13–5) Äußere und innere Bestrahlung in einem Beschleuniger.

vermieden werden sollen. Meist wird Wasserkühlung verwendet. Auch dem Wärmeübergang von der Probe zur Kühlfläche muß Beachtung geschenkt werden, wenn keine allzu starke lokale Überhitzung in der Probe eintreten soll.

Die Dicke der Probe ist bei der Bestrahlung in einem Beschleuniger ebenfalls von größerer Bedeutung als bei der Bestrahlung in einem Reaktor. Während der Fluß an thermischen Neutronen im Reaktor in einer bestimmten Bestrahlungsposition verhältnismäßig konstant ist — sofern keine Stoffe mit hoher Neutronenabsorption zugegen sind —, nimmt die Intensität in einem Strahl von geladenen Teilchen wegen der stärkeren Wechselwirkung in einem Target sehr viel rascher ab. Nur in sehr dünnen Folien kann die Intensität, d. h. der Teilchenfluß, als konstant angesehen werden. Dies ist für die Berechnung der Ausbeute wichtig (vgl. Abschn. 8.7.).

13.3. Trennung von Radionukliden

Durch die Aufgabe, Radionuklide in kleinen Mengen, aber mit hoher Reinheit und möglichst quantitativ abzutrennen, wurde die Entwicklung moderner Trennverfahren sehr stark gefördert.

Die Frage der radiochemischen Reinheit spielt im Hinblick auf die Verwendung der Radionuklide eine wichtige Rolle. Dies gilt insbesondere für die Anwendung in der Medizin für diagnostische oder therapeutische Zwecke, aber auch für andere empfindliche Messungen. Besonders unangenehm ist die Verunreinigung mit langlebigen Radionukliden (vgl. Abb. (5–6)), weil sich dann der Anteil der Verunreinigung mit der Zeit in starkem Maße erhöht. Ist z. B. die radiochemische Reinheit von Ba–140, das frisch aus Spaltproduktlösungen abgetrennt wurde, größer als 99% und enthält dieses Präparat als Verunreinigung nur 0,1% seiner Aktivität an dem langlebigen Spaltprodukt Sr–90, so wächst der Aktivitätsanteil des Sr–90 innerhalb von 3 Monaten auf 11,5% an. Aus diesen Gründen ist die Entwicklung von Trennverfahren hoher Selektivität und Nachweisverfahren hoher Empfindlichkeit für die Chemie der Radionuklide besonders wichtig.

Die Trennverfahren lassen sich folgendermaßen einteilen:

Fällung und Kristallisation
Elektrolyse
Destillation
Extraktion
Ionenaustausch
Chromatographie

Die fraktionierte Kristallisation war eine der ersten Methoden zur Abtrennung und Reindarstellung von Radionukliden. So wurde das Ra–226 von dem Ehepaar Curie durch fraktionierte Kristallisation der Chloride von Barium getrennt und isoliert. Der durch Bestrahlen von Chloriden mit Neutronen nach der Kernreaktion (13.7) gebildete Schwefel kann durch Behandlung mit konzentrierter Salzsäure abgetrennt werden. Dabei kristallisiert das Chlorid aus, während der Schwefel als $^{35}SO_4^{2-}$ in der Mutterlauge angereichert wird.

Fällungsverfahren sprechen nur dann an, wenn das Löslichkeitsprodukt überschritten wird. Sofern die Radionuklide in sehr kleiner Konzentration vorliegen, ist deshalb eine direkte Abtrennung durch eine Fällungsreaktion nicht möglich. Man wendet dann das Verfahren der Mitfällung an. Dabei wird eine Komponente zugesetzt, die sich unter den betreffenden Bedingungen chemisch ähnlich verhält wie das Radionuklid, das abgetrennt werden soll. Die zugesetzte Komponente wird als Träger bezeichnet. Die Mitfällung unter Zugabe eines Trägers ist eine sehr häufig benutzte Methode zur Abtrennung von Radionukliden. Als Träger kommen isotope Nuklide oder nicht-isotope Nukli-

de in Frage. Im Falle der Zugabe eines isotopen Trägers wird die spezifische Aktivität des Radionuklids erheblich herabgesetzt; ein nichtisotoper Träger dagegen kann später abgetrennt werden. Es gibt zahlreiche Beispiele für die Abtrennung von Radionukliden durch Mitfällung. So eignen sich beispielsweise Bariumionen als Träger für Radium. Hydroxide, insbesondere Eisenhydroxid und andere Metallhydroxide, sind wegen ihrer großen spezifischen Oberfläche als Träger besonders vorteilhaft. Zur Abtrennung und Reinigung kleiner Mengen von Actiniden wird häufig eine Lanthanfluoridfällung vorgenommen, weil die Actinide mit Fluoridionen ebenfalls schwerlösliche Verbindungen liefern und deshalb zusammen mit dem Lanthan ausfallen. Wenn man umgekehrt bei einer Fällungsoperation die Mitfällung eines in kleinen Mengen vorhandenen Radionuklids vermeiden will, setzt man einen sogenannten Rückhalteträger zu. Besonders wirksam sind isotope Rückhalteträger; sie führen jedoch zu einer Verminderung der spezifischen Aktivität. Das Verhalten trägerfreier Radionuklide wird in Abschn. 13.4. näher besprochen.

Für die Filtration im Anschluß an eine Fällungsreaktion benutzt man meist eine sogenannte Hahnsche Nutsche (vgl. Abb. (13–6)). Die-

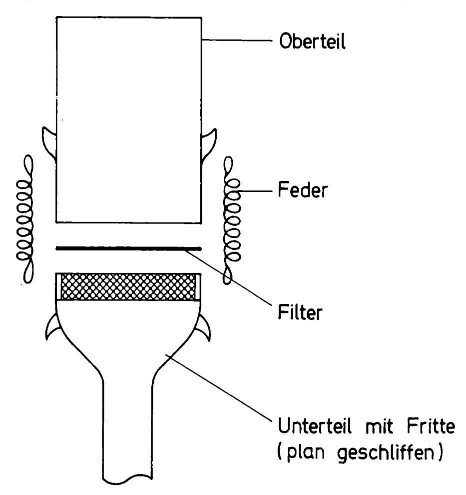


Abb. (13–6) Skizze einer Hahnschen Nutsche.

se besteht aus einem Unterteil mit Fritte, die plangeschliffen ist, und einem Oberteil, das durch Federn oder Gummi angepreßt wird. Der Vorteil der Hahnschen Nutsche besteht darin, daß das Filter mit dem Präparat sehr leicht entnommen und nach Überführung auf ein Präparateschälchen gegebenenfalls direkt für eine Aktivitätsmessung verwendet werden kann.

Die elektrolytische Abscheidung von Radionukliden fand bei der Untersuchung der natürlichen Radionuklide häufig Verwendung. Diese Methode ist sehr nützlich, wenn man möglichst dünne Präparate erhalten will; sie besitzt deshalb für die Herstellung von Standardpräparaten große Bedeutung. Polonium beispielsweise kann mit guter Ausbeute anodisch auf Kupfer, Platin oder Silber abgeschieden werden, ebenso Blei und Mangan. Durch Elektrolyse der Nitrate oder Chloride in Aceton-haltiger alkoholischer Lösung ist es möglich, Thorium und Actinium an der Kathode abzuscheiden. Auch stark elektropositive Metalle können abgetrennt werden, z. B. Radium durch Elektrolyse des Jodids oder Thiocyanats in Aceton. Die Abtrennung des Na–22 von Magnesium im Anschluß an die Kernreaktion (13.19) ist durch Elektrolyse an einer Quecksilberkathode möglich.

Die Abtrennung durch Destillation ist auf solche Fälle beschränkt, in denen die Radionuklide in Form einer flüchtigen Verbindung vorliegen. Die Gewinnung von J–131 aus bestrahltem Tellur durch Destillation haben wir bereits in Abschn. 13.1. besprochen. In ähnlicher Weise kann Ruthenium als Rutheniumtetroxid aus bestrahltem Molybdän oder aus Spaltproduktlösungen durch Erhitzen in oxydierendem Medium (z. B. Perchlorsäure oder Kaliumpermanganat) abgetrennt werden. Technetium ist beim Erhitzen in konzentrierter Schwefelsäure auf 150 bis 200 °C als Tc_2O_7 flüchtig. Cd–107, das durch Bestrahlen von Silber mit Deuteronen nach der Kernreaktion $^{107}Ag(d,2n)^{107}Cd$ erhalten wird, ist durch Erhitzen auf 900 °C im Vakuum vom Silber abtrennbar. Zur Reinigung von P–32 kann die Verflüchtigung als Phosphorpentachlorid im Chlorstrom dienen.

Extraktionsverfahren finden eine sehr breite Anwendung zur Abtrennung von Radionukliden, insbesondere deshalb, weil sie einfach und rasch ausgeführt werden können. Die Zugabe eines Trägers ist nicht erforderlich. Der Verteilungskoeffizient K_d ist gegeben durch das Nernstsche Verteilungsgesetz

$$K_d = \frac{c_1}{c_2} \tag{13.21}$$

(c_1 und c_2 sind die Konzentrationen in den beiden Phasen, z. B. in der wässerigen und der organischen Phase). In Tab. 13.7. sind einige ausgewählte Beispiele für die Abtrennung von Radionukliden durch Extraktion zusammengestellt. Besonders vorteilhaft sind solche Extraktionsmittel, die sich durch hohe Selektivität auszeichnen, d. h. durch

Tabelle 13.7.
Beispiele für die Gewinnung von Radionukliden durch Extraktion

Element	Extraktionsmittel	Bemerkungen
Eisen	Isopropyläther	Extraktion zu 99% aus stark salzsaurer Lösung als solvatisiertes $HFeCl_4$;
	Cupferron in Chloroform	Quantitative Extraktion als Fe^{III}–cupferrat aus salzsaurer Lösung.
Brom	Tetrachlorkohlenstoff	Extraktion als Br_2 aus salpetersaurer Lösung; Einhaltung bestimmter Bedingungen erlaubt eine Trennung von J_2.
Strontium	α-Thenoyltrifluoraceton (TTA) in Benzol	Bei pH > 10.
Yttrium	Di–2–äthylhexylphosphat (D2EHP) in Toluol	In salzsaurer Lösung Abtrennung von Sr;
	Tri–n–butylphosphat (TBP)	Hoher Verteilungskoeffizient für stark salpetersaure Lösung (Trennung von den Seltenen Erden).
Zirkonium	Tri–n–butylphosphat unverdünnt oder in CCl_4, Kerosin, Benzol, Toluol	Aus stark salzsaurer oder salpetersaurer Lösung werden Zr und Nb mit hohem Verteilungskoeffizienten extrahiert;
	Di–n–butylphosphat (DBPA) in Di–n–butyläther	Aus saurer Lösung quantitative Extraktion; Mitextraktion von anwesendem Niob wird durch Zugabe von H_2O_2 fast völlig zurückgedrängt.
Technetium	Tetraphenylarsoniumchlorid in Chloroform	Extraktion aus neutraler oder basischer Lösung in Anwesenheit von H_2O_2 als $(C_6H_5)_4$ $AsTcO_4$ mit hohem Verteilungskoeffizienten (Trennung aus Spaltprodukten).
Jod	Tetrachlorkohlenstoff	Extraktion als J_2 aus saurer Lösung; bei Einhaltung bestimmter Bedingungen ist eine direkte Trennung des Jods von den anderen Spaltprodukten möglich.

Fortsetzung Tabelle 13.7.

Element	Extraktionsmittel	Bemerkungen
Cäsium	Natriumtetraphenylborat in Amylacetat	Selektive Extraktion als $Cs(C_6H_5)_4B$ in Amylacetat aus wäßriger gepufferter Lösung (Natriumcitrat/HNO_3)
Cer	Diäthyläther	Extraktion als Ce^{IV} aus stark salpetersaurer Lösung mit guter Ausbeute (Trennung von den dreiwertigen Lanthaniden);
	Tri–n–butylphosphat (TBP)	Extraktion des Ce^{IV} aus salpetersaurer Lösung mit guter Ausbeute.
Actinium	α-Thenoyltrifluoraceton (TTA) in Benzol	Bei pH 6 aus wäßriger Lösung.
Thorium	Methylisobutylketon (Hexon)	Extraktion aus salpetersaurer Lösung mit hohem Verteilungskoeffizienten;
	α-Thenoyltrifluoraceton (TTA) in Benzol	Extraktion aus saurer Lösung;
	Tri–n–butylphosphat (TBP) in Kerosin	Extraktion aus angesäuerter Natriumnitratlösung (Technisches Verfahren).
Uran	Diäthyläther	Selektive Extraktion der Uranylionen bei Einhaltung bestimmter Bedingungen;
	Tri–n–butylphosphat (TBP) in Kerosin	Extraktion der Uranylionen aus sauren Lösungen mit hohem Verteilungskoeffizienten (Technisches Verfahren).
Plutonium	Tri–n–butylphosphat (TBP) in Kerosin	Extraktion des Pu^{VI} aus stark salpetersaurer Lösung mit hohem Verteilungskoeffizienten; auch Pu^{IV} wird extrahiert.
Americium und Curium	α-Thenoyltrifluoraceton in Benzol	Quantitative Extraktion als Am^{III} und Cm^{III} bei pH $\approx$ 4.
Berkelium	Di–2–äthylhexylphosphat (D2EHP) in Heptan	Extraktion aus stark salpetersaurer Lösung in Gegenwart von $KBrO_3$ als Bk^{IV}. Möglichkeit der Trennung von Bk^{III}, Cm^{III} und Cf^{III}.

große Unterschiede in den Verteilungskoeffizienten. In diesem Zusammenhang haben Ketone, Ester der Phosphorsäure und langkettige Amine große Bedeutung gewonnen. Thenoyl–2–trifluoraceton (TTA), ein Diketon, eignet sich zur selektiven Abtrennung von Thorium- und Zirkoniumisotopen im Laboratorium. Di–2–äthylhexyl-phosphat (D2EHPA), ein Diester der Phosphorsäure, wird für die Abtrennung von Sr–90 in größerem Maßstab verwendet. Auch bei der Abtrennung von Radionukliden durch Szilard-Chalmers-Reaktionen kommen bevorzugt Extraktionsverfahren zur Anwendung, z. B. für die Isolierung von J–128 aus bestrahltem Äthyljodid (vgl. Abschn. 9.4.), die Abtrennung von Fe–59 aus bestrahltem Ferrocen und die Abtrennung von Br–80 aus Brombenzol, das mit Br–80m markiert ist. In der Kerntechnik nehmen Methylisobutylketon (Hexon), Tributylphosphat (TBP) und Trilaurylamin (TLA) als Extraktionsmittel im Rahmen der Wiederaufarbeitung der Brennstoffelemente zur Abtrennung und Reinigung von Uran und Plutonium einen wichtigen Platz ein (vgl. Abschn. 11.8.).

Ionenaustauschverfahren sind im kernchemischen Laboratorium für die Trennung von Radionukliden ebenfalls unentbehrlich geworden. Auch auf diesem Gebiet wurde die Entwicklung entscheidend durch die Kernchemie befruchtet. Der Austausch von Protonen gegen andere Kationen in einem Ionenaustauscher kann durch folgende Gleichung beschrieben werden:

$$n\overline{\mathrm{H}} + \mathrm{M}^{n+} \rightleftharpoons n\mathrm{H}^+ + \overline{\mathrm{M}}. \tag{13.22}$$

Für die Gleichgewichtskonstante gilt:

$$K_1 = \frac{[\mathrm{H}^+]^n\,[\overline{\mathrm{M}}]}{[\overline{\mathrm{H}}]^n\,[\mathrm{M}^{n+}]}. \tag{13.23}$$

Die überstrichenen Größen bedeuten: am Austauscher. Der Verteilungskoeffizient K_d für die Kationen M^{n+} ist gegeben durch den Ausdruck:

$$K_d = \frac{[\overline{\mathrm{M}}]}{[\mathrm{M}^{n+}]}. \tag{13.24}$$

Mit Gl. (13.23) folgt daraus

$$K_d = K_1 \left(\frac{[\overline{H}]}{[H^+]} \right)^n \tag{13.25}$$

beziehungsweise durch Logarithmieren:

$$\lg K_d = \lg K_1 + n \lg [\overline{H}] + n \text{ pH}. \tag{13.26}$$

Bei geringer Belegung des Ionenaustauschers, d. h. bei geringer Konzentration der austauschbaren Ionen, ist $[\overline{H}]$ konstant, und es folgt:

$$\lg K_d = \text{const} + n \text{ pH}. \tag{13.27}$$

Nach dieser Gleichung sollte der Logarithmus des Verteilungskoeffizienten mit dem pH-Wert ansteigen; die Steigung ist durch die Zahl n gegeben. Der Trennfaktor für die Trennung von zwei verschiedenen Kationen gleicher Ladung ist

$$T_{f(1,2)} = \frac{K_d(1)}{K_d(2)} = \frac{K_1(1)}{K_1(2)}. \tag{13.28}$$

Beispiele für die Trennung von Radionukliden durch Ionenaustauschverfahren sind in Tab. 13.8. angegeben. Die Harzaustauscher, die als Kationen- oder Anionenaustauscher in den Handel kommen, besitzen verhältnismäßig niedrige Selektivität. Durch Verwendung von Komplexbildnern bei der Elution kann die Selektivität sehr stark erhöht werden. Dies beruht darauf, daß im Bereich bestimmter pH-Werte der Trennfaktor durch die Unterschiede in den Stabilitätskonstanten K_2 der Komplexe und nicht mehr durch die verhältnismäßig geringen Unterschiede der Gleichgewichtskonstanten K_1 der Austauschgleichgewichte bestimmt wird:

$$T_{f(1,2)} = \frac{K_d(1)}{K_d(2)} = \frac{K_2(1)}{K_2(2)}. \tag{13.29}$$

Als Komplexbildner werden α-Oxysäuren (z. B. Milchsäure) und Komplexone verwendet. Nach dieser Methode können die Lanthaniden und Actiniden getrennt werden (Abb. (13–7)). Durch Einführung von funktionellen Gruppen hoher Selektivität ist es möglich, Harzaustauscher mit verbesserten Austauscheigenschaften zu synthe-

Tabelle 13.8.
Beispiele für die Trennung von Radionukliden durch Ionenaustauschverfahren

Zu trennende Elemente	Ionenaustauscher	Elutionsmittel
Cs/Rb	Zirkoniumwolframat	1 m NH_4Cl-Lösung
Cs/Rb, K	Duolit C–3	0,3 n HCl (Rb + leichtere Alkalimet.), 3 n HCl(Cs)
Cs/Rb/K/Na	Ti-Hexacyanoferrat	1 n HCl
Erdalkalien	Dowex–50	1,5 m Ammoniumlactatlösung (pH 7)
Cs/Ba/Seltene Erden	Dowex–50 X–10	$LiNO_3$-Lösungen
Ba/Ra	Dowex–50	0,32 m Ammoniumcitratlösung (pH 5,6)
Seltene Erden	Dowex–50 Amberlit IR–100 H Zeo-Karb 225	5%ige Ammoniumcitratlösung (pH 3–3,5); 1 m Milchsäure (pH 3,2); 0,2–0,4 m Lösung von α-Hydroxyisobuttersäure (pH 4,0–4,6); oder 0,025 m EDTA-Lösung (pH 3,2)
Übergangselemente Mn/Co/Cu/Fe/Zn	Dowex–1	Elution mit HCl abnehmender Konzentration
Zr/Nb	Dowex–1 oder Dowex–50	HCl-HF-Lösungen, Elution von Nb mit 1 m HCl + H_2O_2; Elution von Zr mit 0,5%iger Oxalsäurelösung
$Zr^{IV}/Pa^{V}/Nb^{V}/Ta^{V}$	Dowex–1	HCl-HF-Lösungen
Actiniden/Lanthaniden	Dowex–50 oder Zeo-Karb 225	20%iges Äthanol, gesättigt mit HCl-Gas (Actiniden werden zuerst eluiert)
	Amberlit IRA–400	13 m HCl
Actiniden	Dowex–50	5%ige Ammoniumcitratlösung (pH 3,5); 0,4 m Ammoniumlactatlösung (pH 4–4,5) 0,4 m Ammonium-α-hydroxybutyratlösung (pH 4–4,6)
$Th^{IV}/Pa^{V}/U^{VI}$	Dowex–1 X–10	Elution mit 10 m HCl bzw. 9 m HCl–1 m HF

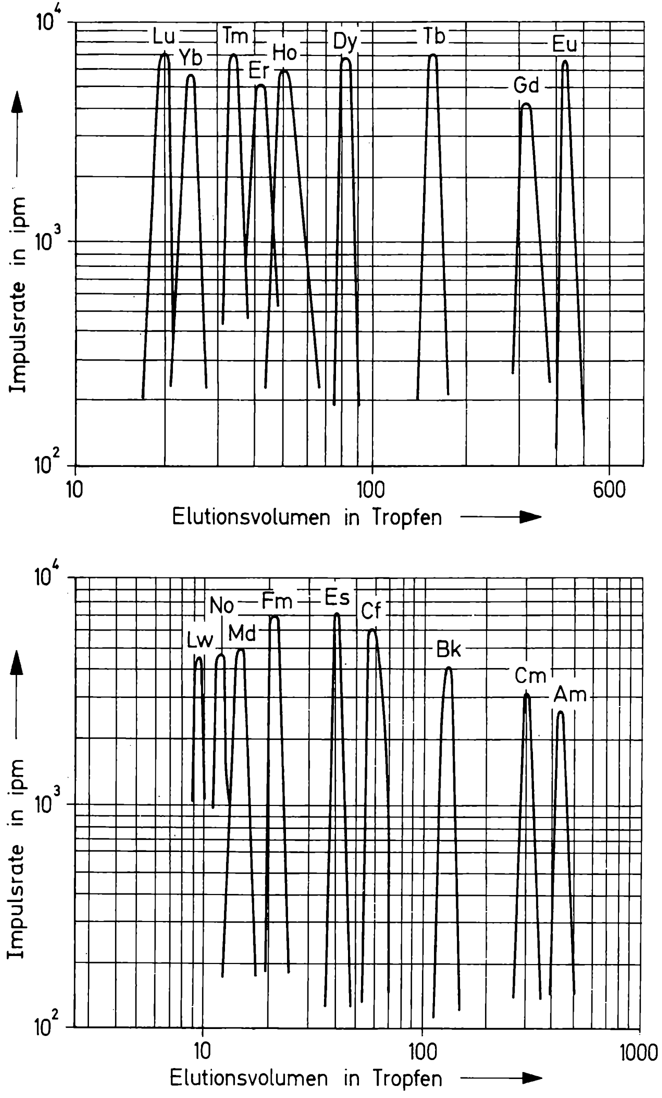


Abb. (13–7) Trennung der Lanthaniden bzw. Actiniden in einer Ionenaustauschersäule (Dowex–50) bei 87 °C mit α-Hydroxyisobuttersäure als Elutionsmittel.

tisieren. Auch eine größere Reihe anorganischer Austauscher befindet sich im Handel, z. B. Zirkonoxidhydrat, Zirkonphosphat. Die schwerlöslichen gelartigen Oxidhydrate, Phosphate oder Hexacyanoferrate des Zirkoniums, Titans und anderer Elemente zeichnen sich durch verhältnismäßig hohe Selektivität aus. Beispielsweise werden von den Hexacyanoferraten Cäsiumionen sehr fest gebunden und können deshalb aus Spaltproduktlösungen selektiv abgetrennt werden.

Tabelle 13.9.
Beispiele für die Anwendung chromatographischer Verfahren zur Trennung von Radionukliden

Zu trennende Elemente	Trägersubstanz	Mobile Phase
Cs aus Spaltprodukten	Cellulosepulver	Phenol–2n Salzsäure
Ra/Ba	Aluminiumoxid	Wasser
Sc/Seltene Erden	Papier (Whatman 1)	Äthanol–2n Salzsäure (9 : 1)
Sc/Seltene Erden	Cellulosepulver	Methylacetat-Wasser-Salpetersäure (85 : 10 : 5)
Seltene Erden	Papier (Elektrophorese 300 V; 3,5 Stunden)	1%ige Citronensäure
La/Ac	Papier (Elektrophorese 300 V; 3,5 Stunden)	1%ige Citronensäure
Zr/Hf	Papier (Whatman 1, absteigend)	Äthyläther–konz. Salpetersäure (87,5 : 12,5)
	Papier (Whatman 1, absteigend)	Dichloräthylenglykol–30%ige Salpetersäure (1 : 1)
Zr/Nb	Papier (Schleicher und Schüll 2043 bM, aufsteigend)	Methyläthylketon – 40%ige Flußsäure (2 : 1)
Th/Seltene Erden	Cellulosepulver	Äthyläther–konz. Salpetersäure (87,5 : 12,5)
Ta/Nb	Aluminiumoxid	4%ige Ammoniumoxalatlösung eluiert Tantal
Nb/Ta	Cellulosepulver	Wassergesättigtes Methyläthylketon (Elution von Tantal), Methyläthylketon-Flußsäure (87,5 : 12,5) (Elution von Niob)
Pa/Nb/Ta	Papier	Butanol–HCl–HF–H_2O (50 : 25 : 1 : 24)
Nb/Ta	Papier	Methyläthylketon HF–H_2O (88 : 4 : 8)

Fortsetzung Tabelle 13.9.

Zu trennende Elemente	Trägersubstanz	Mobile Phase
Sb/Bi	Aluminiumoxid	Wasser
Co/Cu, Fe, Ni	8–Hydroxychinolin (als Pulver in einer Säule)	Wasser
Cs/Cu/Fe	Aluminiumhydroxid	Wasser
Co/Fe	Papier	Aceton–HCl–Wasser (90 : 5 : 5) (Elution von Fe)

Auch Ammoniumphosphormolybdat eignet sich zur selektiven Abtrennung des Cäsiums. Neben den synthetischen Austauschern werden auch in der Natur vorkommende anorganische Verbindungen verwendet, die Ionenaustauscheigenschaften besitzen.

Für die Abtrennung von Radionukliden im Laboratorium haben sich Ionenaustauschverfahren sehr bewährt. Auch für technische Trennungen sind Ionenaustauscher geeignet, sofern die Aktivität nicht zu hoch ist. In radioaktiven Lösungen kommt es infolge der Radiolyse des Wassers zur Bildung von Gasbläschen, welche die Eluierbarkeit der Säule beeinträchtigen. Harzaustauscher erfahren außerdem unter dem Einfluß ionisierender Strahlung eine langsame Zersetzung; anorganische Austauscher besitzen größere Strahlenresistenz.

Chromatographische Verfahren können sehr vielfältig angewendet werden. In Tab. 13.9. sind einige Beispiele aufgeführt. Für die Verteilungschromatographie, die auf den Verteilungsgleichgewichten der Komponenten zwischen der stationären und der mobilen Phase beruht, eignen sich solche Substanzen, die auch als Extraktionsmittel Verwendung finden, z. B. Phosphorsäureester. Sie können als stationäre Phase auf einer inerten Trägersubstanz (z. B. Teflonpulver) aufgebracht werden. Man spricht dann auch von umgekehrter Verteilungschromatographie („reversed partition chromatography“). In der Adsorptionschromatographie finden oberflächenaktive Substanzen wie Aluminiumoxid oder Silicagel Verwendung.

13.4. Trägerfreie Radionuklide

Trägerfreie Radionuklide sind frei von isotopen Beimengungen. Wenn die Halbwertzeit nicht extrem hoch ist, sind die Mengen bzw. Konzentrationen dieser trägerfreien Radionuklide meist sehr klein, und es treten infolgedessen viele Besonderheiten bei chemischen Operationen auf. Die Adsorption und das Verhalten bei Fällungsreaktionen bedürfen einer besonderen Betrachtung. Hinsichtlich der Einstellung von Verteilungs- und Austauschgleichgewichten unterscheiden sich trägerfreie Radionuklide nicht von Substanzen, die in höherer Konzentration vorliegen. Wegen der niedrigen Konzentration sind vielmehr die Gesetzmäßigkeiten des Verteilungsgleichgewichtes nach Gl. (13.21) und der Gleichgewichte nach den Gln. (13.22) bis (13.29) in nahezu idealer Weise erfüllt.

Wenn Radionuklide in kleinen Konzentrationen zur Untersuchung chemischer Reaktionen dienen, spricht man auch von einem radioaktiven Indikator oder „tracer". Radionuklide mit einer Aktivität von 10 nCi sind noch bequem meßbar. Bei einer Gesamtzählausbeute von 10% beträgt die Zählrate 2220 ipm. In Tab. 13.10. ist die Menge von je 10 nCi verschiedener Radionuklide angegeben sowie die Konzentration für den Fall, daß diese Radionuklide in trägerfreier Form in 1 ml gelöst sind. Die Tabelle zeigt, daß es sich dabei meist um extrem kleine Konzentrationen handelt, die sonst bei chemischen Operationen keine Berücksichtigung finden. Bei diesen niedrigen Kon-

Tabelle 13.10.
Menge und Konzentration verschiedener Radionuklide

Radionuklid	Halbwertzeit	10 nCi entsprechen einer Menge von	10 nCi in 1 ml gelöst entsprechen einer Konzentration von
J-131	8,05 d	$8{,}08 \cdot 10^{-14}$ g	$6{,}17 \cdot 10^{-13}$ Mol/l
P-32	14,3 d	$3{,}52 \cdot 10^{-14}$ g	$1{,}10 \cdot 10^{-12}$ Mol/l
S-35	88 d	$2{,}36 \cdot 10^{-13}$ g	$6{,}74 \cdot 10^{-12}$ Mol/l
Fe-59	45 d	$2{,}03 \cdot 10^{-13}$ g	$3{,}45 \cdot 10^{-12}$ Mol/l
Co-60	5,26 a	$8{,}82 \cdot 10^{-12}$ g	$1{,}47 \cdot 10^{-10}$ Mol/l
Cu-67	59 h	$1{,}26 \cdot 10^{-14}$ g	$1{,}88 \cdot 10^{-13}$ Mol/l
Br-82	35,3 h	$9{,}24 \cdot 10^{-15}$ g	$1{,}13 \cdot 10^{-13}$ Mol/l
Zr-95	65 d	$4{,}74 \cdot 10^{-13}$ g	$5{,}04 \cdot 10^{-12}$ Mol/l
Ba-139	83 min	$6{,}12 \cdot 10^{-16}$ g	$4{,}41 \cdot 10^{-15}$ Mol/l
Ce-141	33 d	$3{,}56 \cdot 10^{-13}$ g	$2{,}53 \cdot 10^{-12}$ Mol/l
Au-198	2,7 d	$4{,}11 \cdot 10^{-14}$ g	$2{,}07 \cdot 10^{-13}$ Mol/l

zentrationen spielen Adsorptionseffekte eine große Rolle, die bei höheren Konzentrationen nicht beobachtet werden. Den Einfluß dieser Adsorptionseffekte kann man abschätzen, wenn man berücksichtigt, daß die Austauschkapazität einer Glasoberfläche für Kationen etwa 10^{-10} Mol/cm^2 beträgt. Die Ionen werden an der Glasoberfläche in ähnlicher Weise gebunden wie an einem Ionenaustauscher. Bechergläser oder Erlenmeyerkolben mittlerer Größe besitzen somit ein Ionenaustauschvermögen von etwa 10^{-8} Mol; das entspricht bei einem Volumen von 100 ml einer Konzentration von 10^{-7} Mol/l. Es ist aus diesem Grunde leicht einzusehen, daß sich die Adsorptionseffekte bei Konzentrationen unterhalb 10^{-6} Mol/l in starkem Maße bemerkbar machen können. Manche Ionen diffundieren verhältnismäßig rasch in Glasoberflächen hinein. Dies kann man im Falle von Silberionen oder Bleiionen hoher spezifischer Aktivität beobachten, die längere Zeit (z. B. mehrere Tage) in Form einer Lösung in einem Glasgefäß aufbewahrt werden. Diese Radionuklide lassen sich nur durch Abätzen der Glasoberfläche wieder vollständig entfernen. Um die Adsorptionseffekte an Glasoberflächen zu vermeiden, verwendet man für Lösungen niedriger Konzentrationen Gefäße aus Polyäthylen, Teflon oder Quarz. Die Adsorptionseffekte sind dann sehr viel geringer, können aber nicht ganz ausgeschaltet werden.

Bei einer Fällungsreaktion oder einer Kristallisation kann man nach HAHN folgende Möglichkeiten für das Verhalten von trägerfreien Radionukliden unterscheiden:

Mitfällung durch isomorphen Ersatz,
Mitfällung durch Adsorption.

Wenn das Radionuklid mit dem als Träger wirkenden Bodenkörper isomorph ist und Mischkristalle bildet, wird es bei einer Fällungsreaktion oder Kristallisation im Gitter des Trägers eingebaut. Meist ist das Radionuklid nicht homogen im Festkörper verteilt, sondern die Konzentration ändert sich — ebenso wie bei Schichtkristallen — kontinuierlich von innen nach außen. Hat das Radionuklid die geringere Löslichkeit, so ist es meist im Inneren angereichert; aber auch die Gitterenergie spielt eine Rolle. Diese inhomogene Verteilung des Radionuklids gleicht sich nur allmählich durch Diffusion und Rekristallisationsvorgänge aus. Liegt im Gleichgewicht eine homogene Verteilung des Radionuklids innerhalb des Bodenkörpers vor, dann gilt der Nernstsche Verteilungssatz

$$K_1 = \frac{(c_1)_S}{(c_1)_L} = \frac{(c_1/c_2)_S}{(c_1/c_2)_L} \cdot \frac{(c_2)_S}{(c_2)_L}. \tag{13.30}$$

In dieser Gleichung sind folgende Indizes verwendet: 1 für das Radionuklid, 2 für den Träger, s für den Bodenkörper und L für die Lösung. Der Quotient $(c_2)_L/(c_2)_S$ ist durch die Löslichkeit des Trägers bestimmt und kann mit K_1 zu einer neuen Konstanten K_h zusammengefaßt werden

$$K_h = \frac{(c_1/c_2)_S}{(c_1/c_2)_L} = \frac{(n_1/n_2)_S}{(n_1/n_2)_L}; \tag{13.31}$$

n_1 bzw. n_2 sind die Molzahlen der Komponenten. K_h wird homogener Verteilungskoeffizient genannt.

Der andere Grenzfall ist die inhomogene Verteilung, die nicht durch Diffusion oder Rekristallisation ausgeglichen wird. Das Verteilungsgesetz gilt dann nur für das Gleichgewicht zwischen der jeweiligen Oberflächenschicht und der Lösung im Verlauf des Fällungsvorgangs oder der Kristallisation. Sind n_1 bzw. n_2 die Molzahlen des Radionuklids bzw. des Trägers, die im Bodenkörper abgeschieden werden, und n_1^0 bzw. n_2^0 die Zahl der Mole, die insgesamt vorhanden sind, so gilt

$$\frac{\mathrm{d}n_1}{\mathrm{d}n_2} = K_l \frac{n_1^0 - n_1}{n_2^0 - n_2}. \tag{13.32}$$

Durch Integration folgt daraus:

$$\lg \frac{n_1^0}{n_1^0 - n_1} = K_l \lg \frac{n_2^0}{n_2^0 - n_2}. \tag{13.33}$$

K_l wird logarithmischer Verteilungskoeffizient genannt. In der Praxis zeigt sich, daß bei erhöhter Temperatur nach einigen Stunden im allgemeinen homogene Verteilung erreicht wird. Dies wurde am Beispiel der Verteilung von Ra–226 in Bariumsalzen eingehend untersucht. Bei tiefer Temperatur und sofortiger Trennung von Bodenkörper und Lösung liegt im allgemeinen eine heterogene Verteilung vor, für die das logarithmische Verteilungsgesetz Gl. (13.33) gilt. Ebenso wird bei der Kristallisation durch langsame Verdampfung des Lösungsmittels meist eine logarithmische Verteilung gefunden. In Abb. (13–8) ist der Bruchteil des Radionuklids, der im Falle homogener und heterogener (logarithmischer) Verteilung durch Fällung oder Kristallisation ausgeschieden wird, für verschiedene Verteilungskoeffizienten aufgezeichnet. Die Kenntnis dieser Werte ist für die Durch-

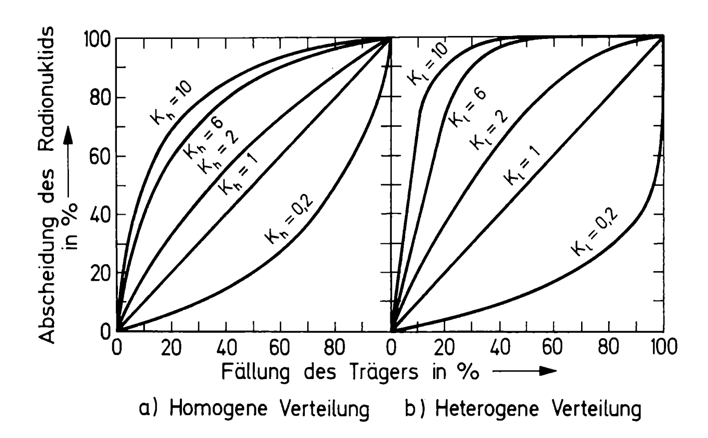


Abb. (13–8) Bruchteil des durch fraktionierte Fällung oder Kristallisation in der festen Phase ausgeschiedenen Radionuklids.

führung von Trennungen durch fraktionierte Fällung oder Kristallisation wichtig. Abb. (13–8) zeigt, daß die Trennung im Falle der heterogenen (logarithmischen) Verteilung besser ist. Beispielsweise führt eine 50%ige Fällung des Trägers bei einem Verteilungskoeffizienten von 6 im Falle der logarithmischen Verteilung zu einer Abscheidung von 98,4% des Radionuklids, im Falle der homogenen Verteilung aber nur zu einer Abscheidung von 86%. Rasche Fällung oder langsame Verdampfung bei möglichst tiefer Temperatur sind deshalb am vorteilhaftesten für die Abtrennung eines Radionuklids durch fraktionierte Fällung oder Kristallisation.

Die Mitfällung trägerfreier Radionuklide durch Adsorption hängt sehr stark von der spezifischen Oberfläche des Bodenkörpers ab. Aus diesem Grunde werden trägerfreie Radionuklide in besonders hohem Maße durch Hydroxide mitgefällt. Die Mitfällung durch Adsorption ist außerdem von der Ladung an der Oberfläche des Bodenkörpers und von der Ladung des trägerfreien Radionuklids abhängig. So werden kationische trägerfreie Radionuklide durch einen Anionenkörper — d. h. einen Bodenkörper, der an seiner Oberfläche einen Überschuß von Anionen enthält — in größerem Umfange adsorbiert als durch einen Äquivalentkörper oder einen Kationenkörper. Außerdem steigt die Adsorption mit der Ladung der betreffenden trägerfreien Radionuklide an. Andere Ionen gleicher Ladung treten allerdings bei diesen Vorgängen in Konkurrenz mit dem Radionuklid. In Abb. (13–9) ist als Beispiel die Menge des trägerfreien La–140 aufgezeichnet, die durch Adsorption bei der Fällung von Bariumsulfat mitgefällt wird. Dabei

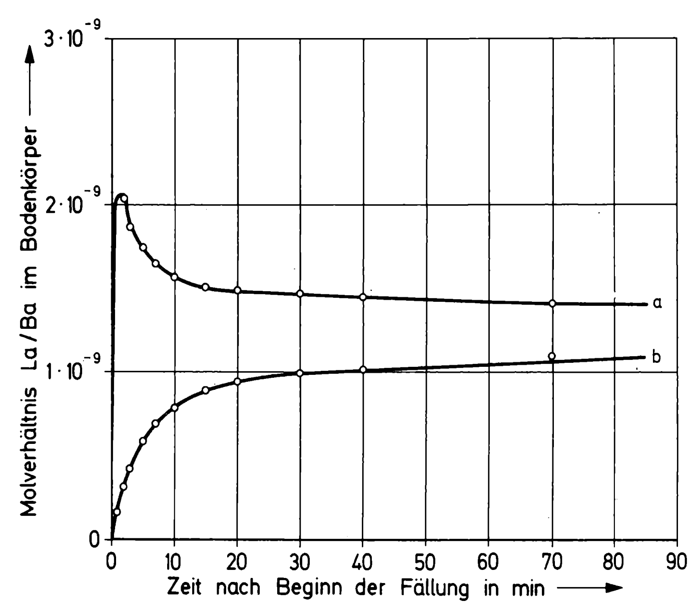


Abb. (13–9) Mitfällung von trägerfreiem Lanthan durch Adsorption bei der Fällung von Bariumsulfat

a) eingeschlossenes Lanthan;
b) an der Oberfläche adsorbiertes Lanthan.

Nach K. H. LIESER u. H. WERTENBACH: Z. physik. Chem., Neue Folge **34** (1962) 1.

ist unterschieden zwischen dem eingeschlossenen Lanthan und dem an der Oberfläche adsorbierten Lanthan. Bei niedrigen Konzentrationen kann die Mitfällung durch Adsorption recht beträchtlich sein.

Im Zusammenhang mit der Mitfällung werden von HAHN noch zwei weitere Möglichkeiten diskutiert: Mitfällung durch Bildung anomaler Mischkristalle und Mitfällung durch innere Adsorption. Diese Möglichkeiten können nicht streng voneinander unterschieden werden. In beiden Fällen wird das trägerfreie Radionuklid im Bodenkörper eingeschlossen, meist in heterogener Verteilung. Unter anomaler Mischkristallbildung versteht man folgenden Vorgang: Atome des Radionuklids, das in makroskopischen Mengen keine Mischkristalle mit dem Träger bildet, werden während des Kristallwachstums auf einem Gitterplatz eingeschlossen und bilden dort Fehlstellen. Unter innerer Adsorption stellt man sich vor, daß die Atome des Radionuklids, die während des Kristallwachstums auf der Kristalloberfläche infolge Adsorption haften, durch neue Kristallschichten überdeckt und dadurch eingeschlossen werden.

Besondere Beachtung verdient die Bildung von Radiokolloiden. Diese können in trägerfreien Lösungen entweder durch Aggregation des Radionuklids zu kolloidalen Dimensionen oder durch Adsorption an kolloidalen Teilchen entstehen. Ein Beispiel für die Aggregation ist das Verhalten von trägerfreiem Po–210 und Bi–210 in neutralem Medium. Beide Radionuklide diffundieren bei niedrigem pH-Wert durch eine Membran, nicht aber bei hohem pH-Wert. In neutraler Lösung bilden sich Hydrolyseprodukte, die zu Aggregaten von kolloidalen Dimensionen zusammentreten. Eine sichtbare Ausfällung findet wegen der niedrigen Konzentration nicht statt. Ebenso bilden auch trägerfreies Zirkonium und trägerfreies Niob in neutraler Lösung Radiokolloide. Infolge dieser Aggregationsvorgänge sind die Diffusionskoeffizienten der Radionuklide in der Lösung stark pH-abhängig. Die Radiokolloide besitzen meist eine Ladung, die durch ihre Wanderung im elektrischen Feld nachgewiesen werden kann (Elektrophorese). Durch Dialyse, Sedimentation oder Zentrifugieren ist es möglich, Radiokolloide aus Lösungen abzutrennen. Auf einer photographischen Platte geben sich kolloidale Lösungen von Radionukliden durch die heterogene Verteilung der Aktivität zu erkennen. Abb. (13–10)

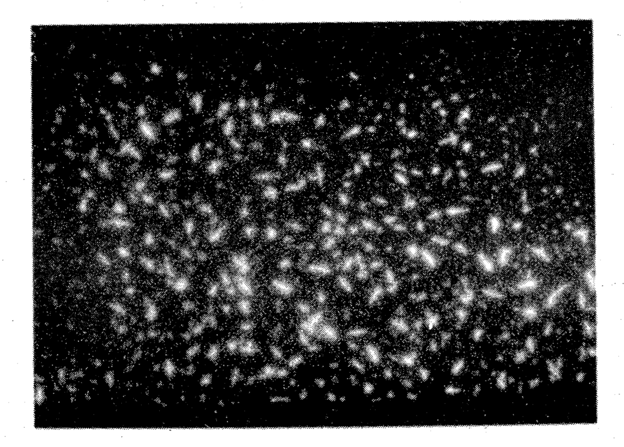


Abb. (13–10) Autoradiographie eines Radiokolloids (Th–234, pH ≈ 3).

zeigt die Autoradiographie eines Radiokolloids. Eine weitere Besonderheit der kolloidalen Teilchen ist, daß sie im allgemeinen in Trennsäulen, die Ionenaustauscher oder andere zum Austausch befähigte Stoffe enthalten, nicht festgehalten werden. Die Bildung von Radiokolloiden durch Aggregation kann durch geeignete Wahl des pH-Wertes oder Zusatz eines Komplexbildners verhindert werden. Die letzt-

genannte Maßnahme ist im allgemeinen recht wirksam; z. B. verhindern Fluoridionen die Entstehung von Radiokolloiden des Zr–95, weil stabile Fluorokomplexe gebildet werden. Die Radiokolloidbildung infolge Adsorption an feinverteilten Schwebstoffen hängt in erster Linie von dem Gehalt der Lösung an solchen kolloidalen Bestandteilen ab. Sie können durch sorgfältige Filtration oder Zentrifugieren entfernt werden.

13.5. Kurzlebige Radionuklide

Chemische Operationen mit kurzlebigen Radionukliden sind erforderlich, wenn Aussagen über die chemischen Eigenschaften und damit auch über die Ordnungszahl erwünscht sind oder wenn eine Trennung von anderen Radionukliden angestrebt wird. Für die Abtrennung von kurzlebigen Radionukliden eignen sich nur solche Trennverfahren, deren Zeitbedarf mit der Halbwertzeit vergleichbar ist. Von den in Abschn. 13.3. besprochenen Verfahren sind Fällungsverfahren nur bedingt geeignet, weil sie meistens zu lange Zeit für das Absitzen des Niederschlages und die Filtration beanspruchen. Extraktionsverfahren sind im allgemeinen gut für die rasche Abtrennung von Radionukliden geeignet. In manchen Fällen ist allerdings die Einstellung des Verteilungsgleichgewichtes behindert, und zwar dann, wenn der Komplexbildner in der wässerigen Phase unlöslich ist, so daß sich das Komplexbildungsgleichgewicht nur an der Phasengrenzfläche einstellen kann. Die Einstellung von Ionenaustauschgleichgewichten in Trennsäulen nimmt im allgemeinen mehrere Minuten in Anspruch. In Abb. (13–11) ist als Beispiel die Aufnahme von Sr–85 durch einen Harzaustauscher als Funktion der Zeit aufgetragen (Aktivitätsabnahme in der Lösung als Funktion der Zeit). Die Halbwertzeit für die Einstellung des Austauschgleichgewichts mit dem Austauscher beträgt in diesem Fall 3,5 min. Diese langsame Gleichgewichtseinstellung spielt nur eine untergeordnete Rolle, wenn kleine (z. B. trägerfreie) Mengen des betreffenden Radionuklids in einer Ionenaustauschersäule fixiert werden sollen; denn die Aufnahme an der Oberfläche des Ionenaustauschers erfolgt verhältnismäßig rasch. Die zur Gleichgewichtseinstellung erforderliche Zeit fällt jedoch voll ins Gewicht, wenn die quantitative Elution des Radionuklids aus der Trennsäule angestrebt wird; in diesem Fall muß es aus dem Inneren der Körner des Ionenaustauschers heraustransportiert werden. Anorganische Verbindungen sind ebenfalls

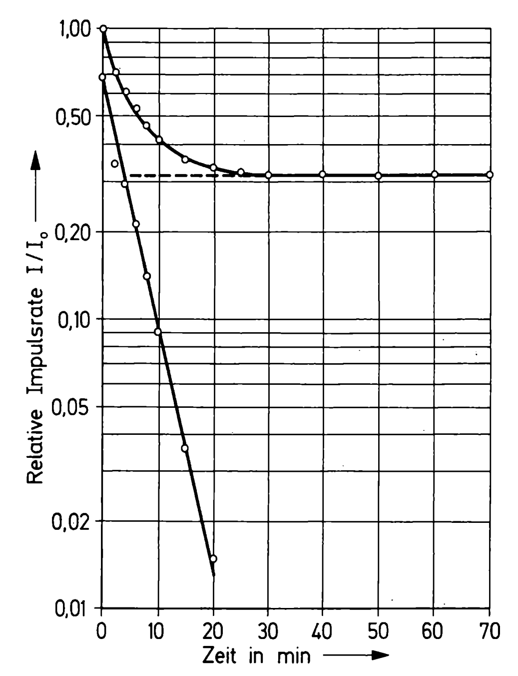


Abb. (13–11) Aufnahme eines Radionuklids durch einen Harzaustauscher als Funktion der Zeit (Beispiel: Sr–85 an Dowex 50 X 8, 100–200 mesh, Schüttelversuch). Nach K. H. Lieser u. K. Bächmann: Z. analyt. Chem. **225** (1967) 379.

für rasche Abtrennungen geeignet, wenn sich das Ionenaustauschgleichgewicht an der Oberfläche der Ionenkristalle rasch einstellt. Zur Verkürzung der für die Abtrennung erforderlichen Zeit verwendet man am zweckmäßigsten möglichst kurze Trennsäulen. In Abb. (13–12) ist eine solche Trennsäule aus Silberjodid aufgezeichnet, die

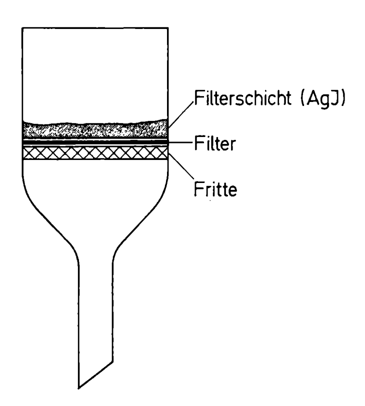


Abb. (13–12) Kurze Trennsäule für die Abtrennung von trägerfreiem Jod durch Austausch an Silberjodid (Filterschicht).

nur aus einer dünnen Schicht besteht und sich für die Abtrennung von Jodidionen oder Jod eignet; diese werden durch die Austauschreaktion

$$AgJ + {}^{*}J^{-} \rightleftharpoons Ag^{*}J + J^{-} \qquad (13.34)$$

gebunden. (Markierte Atome bzw. Ionen sind oben links durch * gekennzeichnet.) Wenn die Austauschreaktionen in Trennsäulen genügend rasch verlaufen, kann man die für die Abtrennung erforderliche Zeit auch durch Absaugen oder Anwendung von Druck herabsetzen. Für chromatographische Trennungen gilt das gleiche wie für Ionenaustauschverfahren. In jedem Fall ist entscheidend, daß sich die Gleichgewichte genügend rasch einstellen.

Kurzlebige Radionuklide können entweder durch Bestrahlung in Kernreaktoren bzw. Beschleunigern gewonnen werden oder in sogenannten Generatoren durch Abtrennung von Mutternukliden mit größerer Halbwertzeit. Wenn die Herstellung in einem Kernreaktor oder Beschleuniger erfolgt, ist ein rascher Transport des Radionuklids zum Ort der Verwendung erforderlich. Am besten geeignet sind pneumatische Rohrpostanlagen, welche die bestrahlte Probe innerhalb von etwa 1 s in das Laboratorium befördern (vgl. Abschn. 12.1.). Generatoren, in denen die Abtrennung eines kurzlebigen Radionuklids von einem Mutternuklid erfolgt, besitzen den großen Vorteil, daß die kurzlebigen Radionuklide unabhängig von einem Kernreaktor oder Beschleuniger gewonnen werden können. Nach jeder Abtrennung bildet sich das kurzlebige Radionuklid durch Zerfall des Mutternuklids nach, so daß es in bestimmten Abständen immer wieder von neuem abgetrennt werden kann. Wichtig ist, daß das Mutternuklid bei der Abtrennung des kurzlebigen Tochternuklids fest fixiert ist, so daß die radiochemische Reinheit des Tochternuklids gewährleistet ist. Meist benutzt man zur Fixierung des Mutternuklids eine Trennsäule, die einen Ionenaustauscher oder ein Adsorbens enthält; das kurzlebige Tochternuklid wird eluiert. Da die Abtrennung in bestimmten Abständen wiederholt werden kann, bezeichnet man solche Systeme, die aus einem langlebigen Mutternuklid und einem kurzlebigen Tochternuklid bestehen, auch als Melksysteme. In Tab. 13.11. sind einige Systeme angegeben, die als Generatoren für kurzlebige Radionuklide in Frage kommen. Solche Generatoren finden überall dort Verwendung, wo kurzlebige Radionuklide häufig gebraucht werden, z. B. in kernchemischen Laboratorien. Große praktische Bedeutung besitzen diese

Tabelle 13.11.
Beispiele für Systeme, die ein langlebiges Mutternuklid und ein kurzlebiges Tochternuklid enthalten und als Generatoren für Radionuklide geeignet sind

Mutternuklid	Tochternuklid	Trägersubstanz	Elutionsmittel
Mg–28 ($t_{1/2}$ = 21 h)	Al–28 ($t_{1/2}$ = 2,3 min)	Dowex–50	1 n NaOH
Ge–68 ($t_{1/2}$ = 275 d)	Ga–68 ($t_{1/2}$ = 68 min)	Aluminiumoxid	0,005 m EDTA
Y–87 ($t_{1/2}$ = 80 h)	Sr–87 m ($t_{1/2}$ = 2,8 h)	Dowex–1	0,5% Zitronensäure
Sr–90 ($t_{1/2}$ = 28 a)	Y–90 ($t_{1/2}$ = 64 h)	Dowex–50	0,2 m Milchsäure
Mo–90 ($t_{1/2}$ = 5,7 h)	Nb–90 m ($t_{1/2}$ = 24 s)	Dowex–1	6 n HCl
Mo–99 ($t_{1/2}$ = 67 h)	Tc–99 m ($t_{1/2}$ = 6,0 h)	Zirkoniumoxidhydrat (HZO–1)	Methyläthylketon + 5 Vol.% 0,01 n HCl
Cd–109 ($t_{1/2}$ = 453 d)	Ag–109 m ($t_{1/2}$ = 40 s)	Dowex–1	10 n HCl
Sn–113 ($t_{1/2}$ = 113 d)	In–113 m ($t_{1/2}$ = 1,7 h)	Zirkoniumoxidhydrat (HZO–1)	0,1 n HNO_3 oder 0,1 n HCl
Cd–115 ($t_{1/2}$ = 43 d)	In–115 m ($t_{1/2}$ = 4,5 h)	Dowex–1 X 8	0,15 m HCl
Te–132 ($t_{1/2}$ = 78 h)	J–132 ($t_{1/2}$ = 2,3 h)	Aluminiumoxid	0,001 bis 0,01 n NH_3
Cs–137 ($t_{1/2}$ = 30 a)	Ba–137 m ($t_{1/2}$ = 2,6 min)	Titanhexacyanoferrat	Wasser
Ba–140 ($t_{1/2}$ = 12,8 d)	La–140 ($t_{1/2}$ = 40,2 h)	Dowex–50	0,5 m Milchsäure
Os–191 ($t_{1/2}$ = 15 d)	Ir–191 m ($t_{1/2}$ = 4,9 s)	Dowex–1	6 n HCl

Generatoren in der Medizin, wo die kurzlebigen Radionuklide für diagnostische oder therapeutische Zwecke in großen Mengen verwendet werden. Der Vorteil der kurzlebigen Radionuklide ist die nur kurzfristige Strahlenbelastung des Patienten. Wichtig ist die radiochemische Reinheit, die einer besonders sorgfältigen Überprüfung bedarf. Die Methode der chemischen Abtrennung der kurzlebigen Radionuklide in reiner Form muß rasch, einfach und zuverlässig sein. Es ist deshalb eine wichtige Aufgabe, neue Verfahren der Abtrennung zu entwickeln und bestehende Verfahren zu verbessern.

13.6. Markierte Verbindungen

Markierte Verbindungen finden in allen Gebieten der Naturwissenschaften und Technik vielseitige Verwendung. In der Chemie dienen sie zur Aufklärung von Reaktionsmechanismen, zum Studium von Diffusions- und Transportvorgängen und für analytische Untersuchungen. Einige Anwendungsbeispiele werden in Kap. 15 besprochen. In der Biologie und Medizin werden markierte Verbindungen zur Aufklärung von Stoffwechselvorgängen verwendet, in der Technik zum Studium von Korrosions- und Transportvorgängen (z. B. Abrieb in einem Verbrennungsmotor, Transport in einer Rohrleitung). Die Anwendung kernchemischer Methoden, ein Arbeitsgebiet, das auch als Isotopentechnik bezeichnet wird, hängt entscheidend davon ab, daß markierte Verbindungen in hinreichender Auswahl verfügbar sind.

Die Markierung einer bestimmten Verbindung kann an verschiedenen Stellen und mit verschiedenen Nukliden erfolgen. Dabei kommen sowohl radioaktive als auch inaktive Nuklide in Frage. Greifen wir als Beispiel einer einfachen Verbindung die Essigsäure heraus: Diese kann sowohl an der Methylgruppe als auch an der Carboxylgruppe mit C–14, C–13 oder C–11 markiert sein. Andererseits kann auch der Wasserstoff der Methylgruppe oder der azide Wasserstoff der Carboxylgruppe mit Deuterium oder Tritium markiert werden. Schließlich ist die Markierung des Sauerstoffs mit O–18 möglich. Für viele Zwecke sind Doppelmarkierungen von Interesse, wobei in einer Verbindung gleichzeitig zwei verschiedene Positionen mit verschiedenen Nukliden markiert werden; daraus ergeben sich bereits für einfache Moleküle vielfältige Möglichkeiten der Markierung. Dementsprechend sind die Kataloge für handelsübliche markierte Verbindungen recht umfangreich.

Folgende Parameter sind wichtig:

a) Art des Nuklids, mit dem die Verbindung markiert ist.
b) Position der Markierung; beispielsweise kann ein bestimmtes Kohlenstoffatom einer organischen Verbindung markiert sein oder die Markierung kann sich auf alle Kohlenstoffatome in den verschiedenen Positionen erstrecken.
c) Spezifische Aktivität der radioaktiv markierten Verbindung bzw. Isotopenverhältnis im Falle der Markierung mit stabilen Isotopen. Die spezifische Aktivität wird meist in der Dimension mCi/mMol = Ci/Mol angegeben.
d) Reinheit der markierten Verbindung; dabei ist zu unterscheiden

zwischen der chemischen und der radiochemischen Reinheit. Letztere gibt an, in welchem Umfang andere — auch isotope — Radionuklide zugegen sind.

Aus diesen verschiedenen Parametern ergeben sich mannigfaltige Möglichkeiten. Die Auswahl richtet sich nach der jeweiligen Aufgabe. Es ist aber einleuchtend, daß die Entwicklung geeigneter Verfahren zur Herstellung von markierten Verbindungen mit den gewünschten Eigenschaften eine wichtige präparative Aufgabe darstellt. In diesem Abschnitt kann nur ein Überblick gegeben werden.

Für die Herstellung von markierten Verbindungen gelten die folgenden allgemeinen Gesichtspunkte: Die umgesetzten Mengen sind oft sehr klein, insbesondere wenn hohe spezifische Aktivitäten erwünscht sind (z. B. 10 mg Benzol mit einer spezifischen Aktivität von 1 mCi/mMol). Diesen kleinen Mengen müssen die Methoden angepaßt sein, z. B. Umsetzung in einer kleinen geschlossenen Apparatur. Auch im Hinblick auf den Strahlenschutz ist eine geschlossene Apparatur oft vorteilhaft. Der verhältnismäßig hohe Preis mancher Radionuklide (z. B. C–14) zwingt dazu, solche Operationen auszuwählen, die mit möglichst hoher Ausbeute verlaufen. Einstufige Reaktionen, die in einem einzigen Versuchsgefäß ausgeführt werden können, sind besonders bevorzugt. Abb. (13–13) zeigt ein Reaktionsgefäß (Filterbecher), in dem verschiedene Operationen hintereinander ausgeführt werden können (Erhitzen, Eindampfen, Filtrieren, Umkristallisieren).

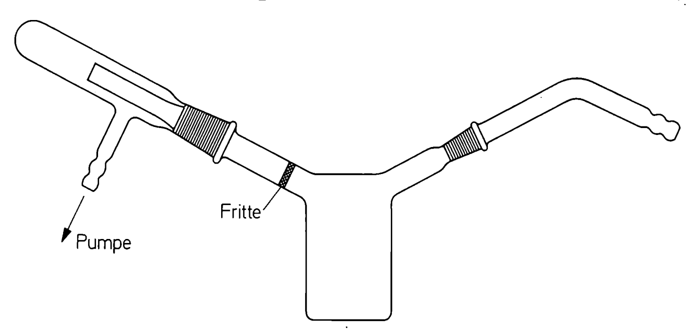


Abb. (13–13) Filterbecher, der für die Ausführung mehrerer Operationen geeignet ist (Erhitzen, Eindampfen, Filtrieren, Umkristallisieren).

Die Methoden zur Herstellung markierter Verbindungen lassen sich folgendermaßen unterteilen:

a) Synthese
b) Biochemische Verfahren
c) Isotopenaustausch
d) Rückstoßmarkierung
e) Selbstmarkierung
f) Strahlenchemische Markierung

Die chemische Synthese wird am häufigsten angewendet. Dazu werden oft bekannte Verfahren entsprechend den oben angegebenen Gesichtspunkten so modifiziert, daß sie für die Herstellung von markierten Verbindungen geeignet sind. Außerdem werden neue Verfahren entwickelt. Als Beispiel für die Darstellung markierter anorganischer Verbindungen sei die Umsetzung von Silberchlorid mit Bor zu markiertem Bortrichlorid in einer geschlossenen evakuierten Apparatur genannt

$$3\,Ag^{36}Cl + B \longrightarrow 3\,Ag + B^{36}Cl_3. \tag{13.35}$$

Ähnliche Reaktionen können auch zur Darstellung anderer markierter, flüchtiger Halogenide dienen. Tab. 13.12. gibt einen Überblick über einige einfache chemische Verfahren zur Darstellung von ^{14}C-markierten organischen Verbindungen aus $Ba^{14}CO_3$ als Ausgangsmaterial. Diese Tabelle läßt erkennen, wie Verbindungen erhalten werden können, die in verschiedenen Positionen mit C–14 markiert sind (z. B. Essigsäure). Als Beispiel für eine mehrstufige Synthese sei die Darstellung von Benzol aus $^{14}CO_2$ angeführt:

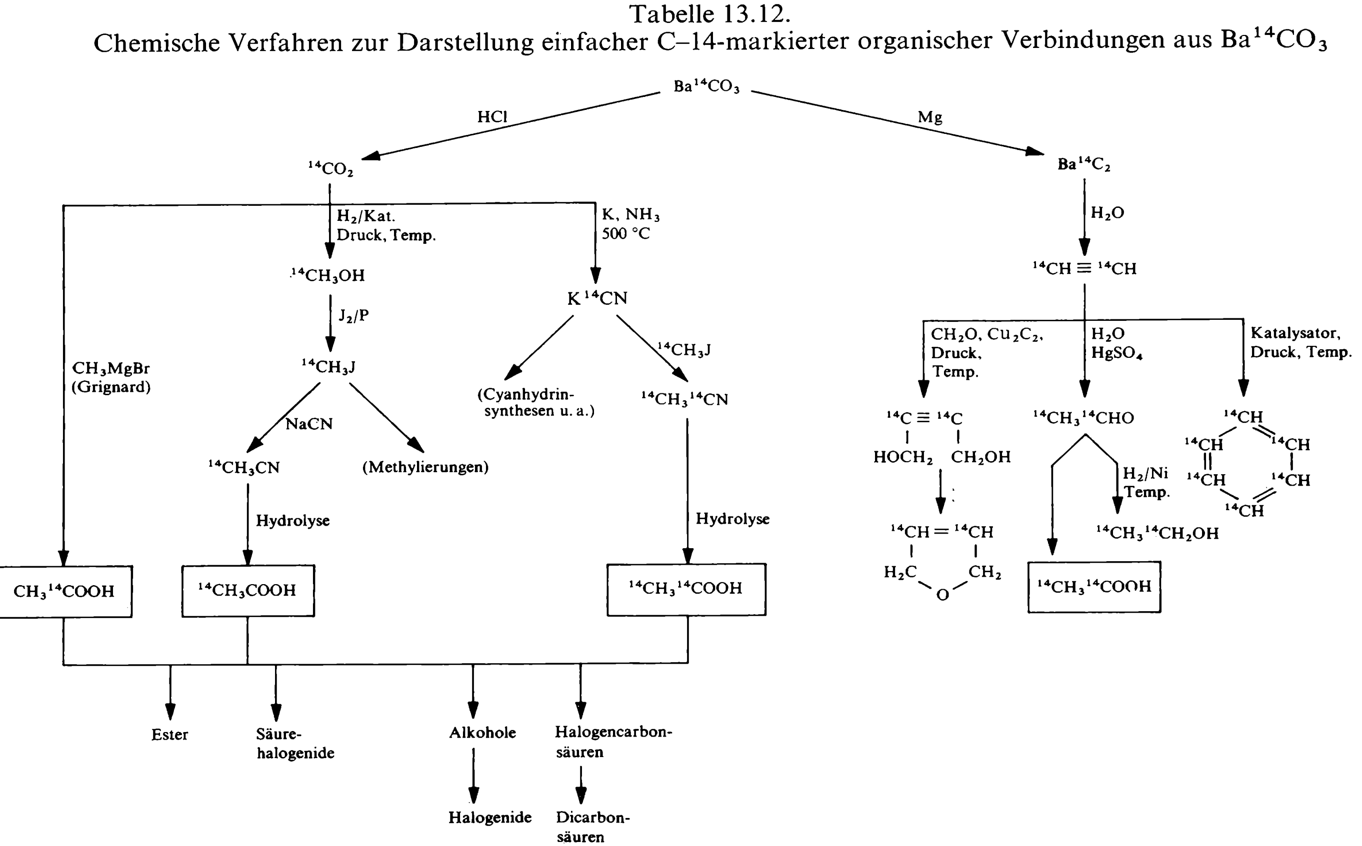
$$^{14}CO_2 + C_5H_9\text{-}MgCl \xrightarrow{\text{Grignard-Reaktion}} C_5H_9\text{-}^{14}COOH \xrightarrow{LiAlH_4} C_5H_9\text{-}^{14}CH_2OH$$

$$\xrightarrow{Al_2O_3} C_5H_7\text{-}^{14}CH_3 \xrightarrow{H_2/Ni} C_5H_9\text{-}^{14}CH_3 \xrightarrow{AlCl_3} C_5{}^{14}CH_{12} \xrightarrow{\text{Pt/Kohle}} C_5{}^{14}CH_6$$

Heute wird ^{14}C-markiertes Benzol vorwiegend aus Acetylen mit Hilfe spezieller Katalysatoren gewonnen.

Die biochemischen Verfahren zur Gewinnung von ^{14}C-markierten Verbindungen beruhen auf der Assimilation von $^{14}CO_2$ durch Pflanzen und auf der Verfütterung von ^{14}C-haltigen organischen Verbindungen an Tiere. Anschließend werden die im pflanzlichen oder tierischen Organismus gebildeten Verbindungen isoliert. Auf diese Weise können z. B. ^{14}C-markierte Glukose, Proteine, Alkaloide, Antibiotika, Vitamine und Hormone gewonnen werden. Für diese Zwecke werden Kulturen — z. B. von *Clorella vulgaris* — in einer $^{14}CO_2$-Atmosphäre

Tabelle 13.12.
Chemische Verfahren zur Darstellung einfacher C-14-markierter organischer Verbindungen aus $Ba^{14}CO_3$



angelegt. Man bezeichnet diese Anlagen, die der Gewinnung von ^{14}C-markierten Verbindungen dienen, auch als „Isotopenfarmen".

Austauschreaktionen können in vielfältiger Weise für die Markierung von organischen und anorganischen Verbindungen ausgenutzt werden. Der wichtigste Vorteil dabei ist, daß die Synthese der betreffenden markierten Verbindungen entfällt. Die Markierung durch Isotopenaustausch ist deshalb vor allen Dingen für solche Verbindungen von Interesse, die nur mit schlechter Ausbeute synthetisiert werden können. Eine Möglichkeit ist die Markierung in einem homogenen System, z. B.

$$Li^{36}Cl\,(\text{gelöst}) + RCl \rightleftharpoons LiCl\,(\text{gelöst}) + R^{36}Cl. \qquad (13.37)$$

Auf diese Weise kann radioaktives Halogen in aliphatische Halogenide eingeführt werden. Die Komponenten werden im Anschluß an die Austauschreaktion durch Destillation getrennt. Wenn nur vernachlässigbar kleine Mengen der radioaktiven Ausgangssubstanz eingesetzt werden, kann die Trennung auch unterbleiben. Voraussetzung hierfür ist, daß die Ausgangssubstanz genügend hohe spezifische Aktivität besitzt, da die spezifische Aktivität bei quantitativem Austausch im Verhältnis der eingesetzten Mengen herabgesetzt wird:

$$A_S(2) = \frac{n_1}{n_2 + n_1} A_S(1) \quad (n_1, n_2 = \text{Molzahlen}). \qquad (13.38)$$

Durch Verwendung von katalytisch wirksamen Stoffen wie $AlCl_3$ können die Möglichkeiten der Markierung durch Isotopenaustausch erweitert werden, z. B. auf aromatische Halogenverbindungen.

Eine recht interessante Möglichkeit ist die Markierung durch heterogenen Isotopenaustausch in Trennsäulen. So können flüchtige Verbindungen, die aziden Wasserstoff enthalten, in gaschromatographischen Säulen mit Tritium markiert werden; nach der gleichen Methode ist auch die Markierung von flüchtigen Halogeniden möglich. Als stationäre Phase werden beispielsweise Sorbit (mit Tritium markiert) bzw. niedrigschmelzende Halogenide verwendet. Da in einer Trennsäule der Austausch als mehrstufige Reaktion erfolgt, kann die mobile Phase die gleiche spezifische Aktivität erreichen wie die stationäre Phase.

Austauschreaktionen, die unterhalb der Zersetzungstemperatur der betreffenden Verbindung nicht oder nur sehr langsam ablaufen, finden in manchen Fällen unter der Einwirkung ionisierender Strahlung

statt. Man spricht dann von strahlungsinduziertem Austausch. Diese Möglichkeit ist dann gegeben, wenn die am Austausch beteiligte Bindung durch ionisierende Strahlung verhältnismäßig leicht spaltbar ist. Der strahlungsinduzierte Isotopenaustausch besitzt beispielsweise für aromatische Halogenverbindungen Interesse, bei denen der Austausch nach Gl. (13.37) ohne Einwirkung ionisierender Strahlung auch bei erhöhter Temperatur nur sehr langsam abläuft, während schon merkliche Zersetzung eintritt.

Die Methoden der Rückstoßmarkierung und der Selbstmarkierung haben wir bereits im Abschnitt 9.7. behandelt. Diese Methoden werden im Vergleich zur Synthese, den biochemischen Verfahren und dem Isotopenaustausch in der Praxis in verhältnismäßig geringem Umfang zur Herstellung von markierten Verbindungen angewendet. Dafür sind folgende Gründe maßgebend: Bei der Selbstmarkierung und in noch stärkerem Maße bei der Rückstoßmarkierung entsteht stets eine Vielzahl von markierten Produkten. Die strahlenchemische Zersetzung ist oft recht erheblich, insbesondere bei komplizierten Verbindungen. Die Ausbeute und die spezifische Aktivität der gewünschten Verbindung sind in vielen Fällen recht niedrig.

Strahlenchemische Reaktionen, z. B. Addition von Halogenen oder Halogenwasserstoffen an eine Doppelbindung, können in manchen Fällen zur Markierung von organischen Verbindungen herangezogen werden.

Literatur zu Kapitel 13

1. G. B. Cook, J. F. Duncan: Modern Radiochemical Practice. Clarendon Press, Oxford 1952.
2. W. J. Whitehouse, J. L. Putman: Radioactive Isotopes – An Introduction to their Preparation, Measurement and Use. Clarendon Press, Oxford 1953.
3. A. C. Wahl, N. A. Bonner: Radioactivity Applied to Chemistry. John Wiley and Sons, New York 1951.
4. R. T. Overman, H. M. Clark: Radioisotope Techniques. McGraw-Hill Book Comp., New York 1960
5. R. A. Faires, B. H. Parks: Radioisotope Laboratory Techniques. George Newnes, London 1958.
6. W. M. Garrison, J. G. Hamilton: Production and Isolation of Carrier-Free Radioisotopes. Chem. Reviews **49** (1951) 237.
7. Monographs on the Radiochemistry of the Elements. Hrsg. W. W. Meinke. Subcommittee on Radiochemistry, National Academy of Sciences. National Research Council. Nuclear Science Series NAS – NS 3001 – 3058.

8. Monographs on Radiochemical Techniques. Hrsg. W. W. MEINKE. Subcommittee on Radiochemistry, National Academy of Sciences, National Research Council. Nuclear Science Series NAS-NS 3101 ff.
9. O. SAMUELSON: Ion Exchange Separations in Analytical Chemistry. John Wiley and Sons, New York 1963.
10. K. A. KRAUS, F. NELSON: Radiochemical Separations by Ion Exchange. Annu. Rev. nuclear Sci. **7** (1957) 31.
11. R. KUNIN: Elements of Ion Exchange. Reinhold Publ. Corp., New York 1960.
12. H. FREISER, G. H. MORRISON: Solvent Extraction in Radiochemical Separations. Annu. Rev. nuclear Sci. **9** (1959) 221.
13. R. H. HERBER: Inorganic Isotopic Synthesis. W. A. Benjamin, Inc., New York 1962.
14. A. MURRAY III and D. LLOYD WILLIAMS: Organic Synthesis with Isotopes, 2 Bde., Interscience Publishers, New York 1958.
15. A. P. WOLF: Labeling of Organic Compounds by Recoil Methods. Annu. Rev. nuclear Sci. **10** (1960) 259.
16. L. YAFFE: Preparation of Thin Films, Sources and Targets. Annu. Rev. nuclear Sci. **12** (1962) 153.
17. International Directory of Isotopes, 3. Aufl., International Atomic Energy Agency, Wien 1964.
18. H. R. SCHÜTTE: Radioaktive Isotope in der organischen Chemie und Biochemie. Verlag Chemie GmbH, Weinheim/Bergstr. 1966.
19. J. R. CATCH: Carbon-14 Compounds. Butterworths, London 1961.
20. M. WENZEL, P. E. SCHULZE: Tritium-Markierung, Darstellung, Messung und Anwendung nach WILZBACH ^{3}H-markierter Verbindungen. Walter de Gruyter & Co., Berlin 1962.

Übungen zu Kapitel 13

1. Wie groß ist die spezifische Aktivität an Cu–64, die durch Bestrahlung von Kupfersulfat in einem Kernreaktor bei einem Neutronenfluß von $3 \cdot 10^{11}\,cm^{-2}\,s^{-1}$ erreicht werden kann?
   Wie groß ist die spezifische Aktivität an S–35, die unter diesen Bedingungen bei einer Bestrahlungszeit von 2 Tagen erhalten wird? $\sigma_{n,\gamma}$(Cu–63) = 4,5 b; $\sigma_{n,\gamma}$(S–34) = 0,27 b.

2. Welche Aktivität an P–32 bzw. Fe–59 wird durch Bestrahlung von Schwefel bzw. Kobalt mit 5 MeV Neutronen bei einer Flußdichte von $10^9\,cm^{-2}\,s^{-1}$ und einer Bestrahlungszeit von 20 Stunden erhalten? (σ-Werte aus Abb. (13–1)).

3. Wie groß ist die Aktivität an Na–24, die bei der Bestrahlung einer dünnen Magnesiumfolie (10 μm) natürlicher Isotopenzusammensetzung mit 10 MeV Deuteronen bei einem Teilchenstrom von

100 μA in einer Stunde erhalten wird, wenn der Durchmesser des Deuteronenstrahls, der voll auf die Magnesiumfolie auftrifft, 2 cm beträgt? (σ-Wert aus Abb. (13–2))

4. Wie groß ist bei einer Fällungsoperation der Bruchteil des Radionuklids im Bodenkörper
   a) bei homogener Verteilung
   b) bei logarithmischer Verteilung,

   wenn der Verteilungskoeffizient 10 beträgt und 30% des Trägers ausgefällt werden?

5. Welcher Bruchteil eines Radionuklids wird in einer Trennsäule zurückgehalten, wenn der Verteilungskoeffizient a) 1,5, b) 3 und c) 10 beträgt und die Säule unter den gegebenen Versuchsbedingungen aus 5 Stufen besteht?

6. In einem aliphatischen Halogenid sollen die Chloratome durch eine Austauschreaktion markiert werden. Gegeben sind 5 g Hexylchlorid und 0,1 g ^{36}Cl-markiertes Lithiumchlorid mit einer spezifischen Aktivität von 0,5 mCi/g Chlor. Wie groß ist die erreichbare spezifische Aktivität des Hexylchlorids
   a) in mCi/g Chlor,
   b) in mCi/mMol?

14. Künstliche Elemente

14.1. Natürliche und künstliche Radioelemente

Wie bereits in Abschnitt 1.1. erwähnt, bezeichnen wir diejenigen Elemente als Radioelemente, die nur in Form radioaktiver Isotope, nicht aber in stabiler Form vorkommen. Von den heute insgesamt bekannten 104 Elementen sind 23 Radioelemente, davon 9 natürliche und 14 künstliche. Sie sind in den Tabellen 14.1. und 14.2. aufgeführt. Die künstlichen Elemente — d. h. die Radioelemente, die nicht in der Natur vorkommen, sondern durch Kernreaktionen erzeugt werden — sind: Technetium ($Z = 43$), Promethium ($Z = 61$) und die Transuranelemente ($Z > 92$).

Die künstlichen Elemente haben inzwischen große Bedeutung gewonnen, in erster Linie die Transuranelemente. Zur Erläuterung mögen zwei Beispiele dienen.

a) Energiegewinnung aus Kernbrennstoffen: Der Besitz von Kernbrennstoffen ist zu einem wichtigen internationalen Wirtschafts- und Machtfaktor geworden. Man kann damit einerseits Kernkraftwerke betreiben und andererseits Atombomben herstellen. Aus diesem Grunde spielt das Plutonium heute eine wichtigere Rolle als das Gold. Der Wert der Kernbrennstoffe, die zur Zeit in den USA im Umlauf sind, beläuft sich auf etwa 50 Milliarden DM. Auch die anderen sogenannten „Atommächte" besitzen größere Mengen Plutonium und andere Transuranelemente. Verträge mit dem Ziel, eine Kontrolle über die Verwendung des Plutoniums und anderer Kernbrennstoffe herbeizuführen (Atomsperrvertrag), werden in der internationalen Politik sehr intensiv diskutiert. Eingehende Kenntnisse über diese Stoffe sind deshalb unerläßlich.

b) Energiegewinnung aus Radionukliden: Für den Betrieb von „Isotopenbatterien" eignen sich am besten α-aktive Radionuklide mit Halbwertzeiten von der Größenordnung 10 bis 100 Jahre. Bei α-Strahlern ist wegen der hohen spezifischen Ionisation die Energie-

Tabelle 14.1.
Überblick über die natürlichen Radioelemente

Ordnungszahl	Symbol	Name des Elements	Langlebigstes Nuklid	Entdeckung	Bemerkungen
84	Po	Polonium	^{209}Po (103 a)	1898 P. u. M. CURIE	Chemisch dem Tellur ähnlich
85	At	Astat	^{210}At (8,3 h)	1940 CORSON, MCKENZIE u. SEGRÈ	Halogen; als Element verhältnismäßig flüchtig
86	Rn	Radon	^{222}Rn (3,8 d)	1900 RUTHERFORD, SODDY	Edelgas
87	Fr	Francium	^{223}Fr (22 min)	1939 PEREY	Alkalimetall; chemisch dem Cäsium sehr ähnlich
88	Ra	Radium	^{226}Ra (1602 a)	1898 P. u. M. CURIE	Erdalkalimetall; chemisch dem Barium ähnlich
89	Ac	Actinium	^{227}Ac (21,6 a)	1899 DEBIERNE	Chemisch dem Lanthan ähnlich; etwas stärker basisch
90	Th	Thorium	^{232}Th ($1,41 \cdot 10^{10}$ a)	1828 BERZELIUS	Ausschließlich 4-wertig; chemisch ähnlich Ce^{IV}, Zr^{IV} und Hf^{IV}; in Lösung starke Hydrolyse; viele Komplexverbindungen

Fortsetzung Tabelle 14.1.

Ordnungs-zahl	Symbol	Name des Elements	Langlebigstes Nuklid	Entdeckung	Bemerkungen
91	Pa	Protactinium	^{231}Pa ($3{,}25 \cdot 10^4$ a)	1917 HAHN und MEITNER	Vorzugsweise Oxydationsstufe V; in Lösung sehr starke Hydrolyse; Bildung von Komplexverbindungen bzw. Radiokolloiden
92	U	Uran	^{238}U ($4{,}51 \cdot 10^9$ a)	1789 KLAPROTH	Verbindungen in den Oxydationsstufen III bis VI (bevorzugt VI), in Lösung U^{4+}-, UO_2^{+}- und UO_2^{++}-Ionen

Tabelle 14.2.
Überblick über die künstlichen Radioelemente

Ordnungs-zahl	Symbol	Name des Elements	Langlebigstes Nuklid	Entdeckung	Bemerkungen
43	Tc	Technetium	^{97}Tc ($2{,}6 \cdot 10^6$ a)	1937 PERRIER u. SEGRÈ	Chemisch dem Rhenium ähnlich; bevorzugt 7-wertig
61	Pm	Promethium	^{145}Pm (17,7 a)	1947 MARINSKY, GLENDENIN u. CORYELL	Lanthanid; ausschließlich 3-wertig

93	Np	Neptunium	^{237}Np (2,14 · 10^6 a)	1940 McMillan u. Abelson	Chemisch dem Uran ähnlich; Oxydationsstufe III bis VI
94	Pu	Plutonium	^{244}Pu (8 · 10^7 a)	1940/41 Seaborg u. a.	Chemisch dem Uran ähnlich; Oxydationsstufe III bis VI
95	Am	Americium	^{243}Am (7950 a)	1944/45 Seaborg u. a.	Chemisch dem Plutonium ähnlich; Oxydationsstufe III bis VI
96	Cm	Curium	^{247}Cm (1,6 · 10^7 a)	1944 Seaborg u. a.	Analogie zu Gadolinium } bevorzugt Oxydationsstufe III
97	Bk	Berkelium	^{247}Bk (1,4 · 10^3 a)	1949 Thompson, Ghiorso u. a.	Analogie zu Terbium } bevorzugt Oxydationsstufe III
98	Cf	Californium	^{251}Cf ($\approx$ 800 a)	1950 Thompson, Ghiorso u. a.	Analogie zu Dysprosium } bevorzugt Oxydationsstufe III
99	Es	Einsteinium	^{254}Es (276 d)	1952 Thompson, Ghiorso u. a.	Analogie zu Holmium } bevorzugt Oxydationsstufe III
100	Fm	Fermium	^{257}Fm (80 d)	1953 Thompson, Ghiorso u. a.	Analogie zu Erbium } bevorzugt Oxydationsstufe III
101	Md	Mendelevium	^{257}Md (3 h)	1955 Ghiorso u. a.	Analogie zu Thulium } bevorzugt Oxydationsstufe III
102	No	Nobelium	^{255}No (3 min)	1958 Ghiorso u. a.	Analogie zu Ytterbium } bevorzugt Oxydationsstufe III
103	Lr	Lawrencium	^{257}Lr (8 s)	1961 Ghiorso u. a.	Analogie zu Lutetium } bevorzugt Oxydationsstufe III
104	Ku	Kurtschatovium	?	1964 Flerov u. a. (in Dubna, UdSSR)	Chemisch dem Hafnium und Zirkonium ähnlich

ausbeute verhältnismäßig groß. Kurzlebige α-Strahler klingen zu rasch ab, langlebige besitzen zu niedrige spezifische Aktivität. Geeignete Radionuklide finden sich vor allen Dingen unter den künstlichen Elementen, z. B. Pu–238 und Cm–244.

14.2. Technetium

Die freien Plätze im Periodensystem bei den Ordnungszahlen 43 und 61 gaben zu vielen Untersuchungen Anlaß, welche die Entdeckung dieser fehlenden Elemente zum Ziele hatten. Der Bericht von NODDACK und TACKE über die Entdeckung der Elemente „Masurium" und Rhenium im Jahre 1925 war nur zum Teil richtig. Rhenium konnte später isoliert werden; das Element 43 kommt dagegen nicht in meßbarer Konzentration in der Natur vor. Die Anwendung der Mattauchschen Regel führt zu dem Schluß, daß keine stabilen Isotope des Elements 43 zu erwarten sind (Abb. (14–1)). Da es nach dieser Regel keine benachbarten stabilen Isobare gibt, kommen als stabile Isotope des Elements 43 solche mit den Massenzahlen $A = 93$, $A \leq 91$, $A = 103$ und $A \geq 105$ in Frage. Diese Nuklide sind aber verhältnismäßig weit von der Linie der β-Stabilität entfernt. Heute ist bekannt, daß das langlebigste Isotop dieses Elements eine Halbwertzeit von $2{,}6 \cdot 10^6$ a besitzt. Die Versuche, das Element 43 in der Natur zu finden, schlugen deshalb fehl.

Das Element 43 wurde erstmals von PERRIER und SEGRÈ im Jahre 1937 aus bestrahltem Molybdän isoliert und Technetium („das Künstliche") genannt. Es entstand durch folgende Kernreaktionen:

$$^{98}\text{Mo}\,(\text{n},\gamma)\,^{99}\text{Mo} \xrightarrow[67\,\text{h}]{\beta^-} {}^{99\text{m}}\text{Tc} \xrightarrow[6\,\text{h}]{\text{I. U.}} {}^{99}\text{Tc} \qquad (14.1)$$

Da der Wirkungsquerschnitt der (n,γ)-Reaktion klein ist (0,51 b), ist die Ausbeute an Technetium gering. Verhältnismäßig groß ist die Menge des Technetiums, die bei der Uranspaltung anfällt (Spaltausbeute an Tc–99: 6,3%). Technetium ist heute in Gramm- oder Kilogramm-Mengen zugänglich. In kleinen Mengen entsteht Tc–97 bei der Bestrahlung von Ruthenium:

$$^{96}\text{Ru}\,(\text{n},\gamma)\,^{97}\text{Ru} \xrightarrow[2{,}9\,\text{d}]{\text{K}} {}^{97\text{m}}\text{Tc} \xrightarrow[90\,\text{d}]{\text{I. U.}} {}^{97}\text{Tc} \qquad (14.2)$$

P = Z																			
44	Ru			Ru 93 50 s	Ru 94 57m	Ru 95 1,7h	Ru 96	Ru 97 2,9d	Ru 98	Ru 99	Ru 100	Ru 101	Ru 102	Ru 103 39,6d	Ru 104	Ru 105 4,44h	Ru 106 367d	Ru 107 4,2m	Ru 108 4,5m
43	Tc			Tc 92 4,4m	Tc 93 43m / 2,7h	Tc 94 53m / 293m	Tc 95 61 d / 20h	Tc 96 52m / 4,3d	Tc 97 90d / $2{,}6\cdot10^6$ a	Tc 98 $1{,}5\cdot10^6$ a	Tc 99 6,0h / $2{,}1\cdot10^5$ a	Tc 100 17s	Tc 101 14,0m	Tc 102 4,5m / 5s	Tc 103 50 s	Tc 104 18m	Tc 105 8m		
42	Mo		Mo 90 5,7h	Mo 91 66s / 15,5m	Mo 92	Mo 93 6,9h / >100a	Mo 94	Mo 95	Mo 96	Mo 97	Mo 98	Mo 99 67h	Mo 100	Mo 101 14,6m	Mo 102 11m	Mo 103 62 s	Mo 104 1,3m	Mo 105 40 s	

N = A − Z →

Abb. (14–1) Anwendung der Mattauchschen Regel auf die Frage nach der Existenz stabiler Isotope des Elementes 43 (Ausschnitt aus der Nuklidkarte).

Das Technetium steht chemisch dem Rhenium näher als dem Mangan. Die Ähnlichkeit mit den Nachbarelementen ist stark ausgeprägt (vgl. Abb. (14–2)). Die bevorzugte Oxydationsstufe ist Tc^{VII}, zum Beispiel in Form von Pertechnetat TcO_4^-.

		VI	VII	VIII	
4		24 Cr	25 Mn	26 Fe	
5		42 Mo	43 Tc	44 Ru	
6		74 W	75 Re	76 Os	

Abb. (14–2) Technetium, seine Homologen und Nachbarelemente (Ausschnitt aus dem Periodensystem).

Technetium besitzt auf Grund der korrosionshemmenden Eigenschaften von Pertechnetationen und als Legierungspartner auch ein gewisses technisches Interesse. Zum Beispiel sind Stähle in Wasser bis 250 °C korrosionsbeständig, wenn dem Wasser 5 bis 50 ppm Pertechnetat zugesetzt werden. Perrhenationen besitzen diese Wirkung nicht.

Zur Abtrennung des Technetiums werden verschiedene Methoden verwendet:

a) In Gegenwart von Rhenium als Träger führt eine Sulfidfällung zu $Re_2S_7 + Tc_2S_7$. In verdünnter Salzsäure lösen sich MnS und einige andere Sulfide, nicht aber die Sulfide des Rheniums und Technetiums. Diese können in einer Mischung von Ammoniak und Wasserstoffperoxid gelöst werden. Die Trennung des Rheniums und Technetiums ist auf Grund der Löslichkeit der Sulfide in 9 m Salzsäure möglich; Technetiumsulfid löst sich darin auf, Rheniumsulfid nicht.

b) Durch Mitfällung mit Kupfersulfid ist ebenfalls eine Abtrennung des Technetiums möglich. Anschließend ist eine Trennung von Kupfer und Technetium erforderlich, die z. B. mit Hilfe eines Kationenaustauschers erfolgen kann. Die Kupferionen werden darin zurückgehalten, die Pertechnetationen nicht.

c) Eine verhältnismäßig elegante Methode zur Abtrennung kleiner Mengen Technetium ist die Destillation des Technetiumheptoxids

aus konzentrierter Schwefelsäure; Tc_2O_7 ist leichter flüchtig als Re_2O_7.

Metallisches Technetium (Schmp: 2140 ± 20 °C) kristallisiert ebenso wie Ruthenium, Rhenium und Osmium in hexagonal dichtester Kugelpackung und besitzt gewisse Ähnlichkeit mit metallischem Ruthenium. Im Sauerstoffstrom verbrennt es zu hellgelbem Technetiumheptoxid Tc_2O_7 (Schmp: 119,5 °C). Dieses ist stark hygroskopisch und liefert mit Wasser eine rosafarbene Lösung der Pertechnetiumsäure $HTcO_4$. Die starke Absorption des Pertechnetations erlaubt eine empfindliche spektralphotometrische Bestimmung. Die Pertechnetate von Natrium, Ammonium und Rubidium kristallisieren ebenso wie die entsprechenden Perrhenate, die Molybdate und Wolframate von Blei, Strontium, Calcium, Barium und die Perjodate von Natrium, Kalium, Ammonium, Silber in der Scheelitstruktur ($CaWO_4$). Tc^{VII} ist ebenso wie Re^{VII} schwach paramagnetisch. Andere Wertigkeitsstufen sind weniger beständig, zum Beispiel die Oxide TcO_2, Tc_2O_3.

14.3. Promethium und die Lanthaniden

Promethium gehört zur Gruppe der Lanthaniden, deren Häufigkeit in Abb. (14–3) aufgezeichnet ist. Die Harkinssche Regel, die besagt, daß Elemente mit gerader Ordnungszahl häufiger sind als benachbarte Elemente mit ungerader Ordnungszahl, wird aus dieser Abbildung besonders deutlich. Die Bezeichnung Lanthaniden stammt von GOLDSCHMIDT (1925). Neuerdings ist auch der Name Lanthanoide vorgeschlagen worden. Zu den Seltenen Erden, die mit einer Häufigkeit von 0,012% in der Erdrinde eigentlich nicht selten sind, rechnet man außer den Lanthaniden noch das Yttrium und Scandium; man unterscheidet Ceriterden (Oxide des Lanthan bis Europium, Hauptbestandteil Cer) und Yttererden (Oxide des Gadolinium bis Lutetium, zuzüglich Yttrium, Hauptbestandteil Yttrium).

Die eindeutige Feststellung, daß das Element 61 in der Natur fehlt, war auf Grund des Moseleyschen Gesetzes (vgl. Abschn. 1.2.) mit Hilfe der Röntgenspektroskopie möglich. Die Identifizierung als künstliches Element gelang 1947 MARINSKY, GLENDENIN und CORYELL. Sie arbeiteten Uranspaltprodukte auf, wobei sie durch eine Oxalatfällung die Seltenen Erden abtrennten. Nach Auflösung der Oxalate in Säure

trennten sie Cer als Cer(IV)-jodat ab und dann die Hauptmenge des Yttriums sowie einige Lanthaniden durch Behandlung mit Carbonatlösung als komplexe Carbonate. Die restlichen Elemente wurden

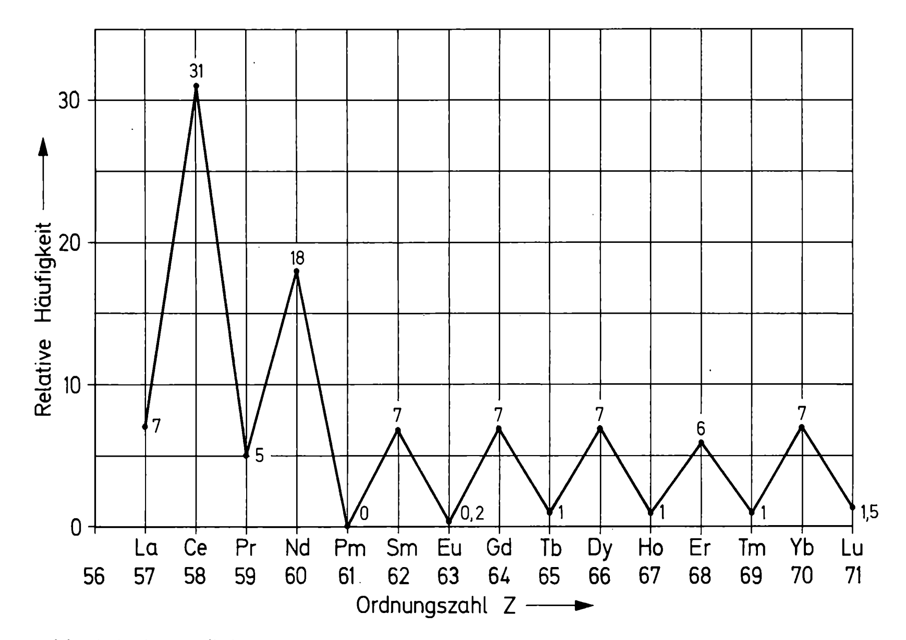


Abb. (14–3) Häufigkeit der Lanthaniden. Aus V. M. Goldschmidt, L. Thomassen: Geochemisches Verteilungsgesetz der Elemente III, Videnskapsselskapets Skrifter. I. Mat.-Naturv. Kl., 1924, Nr. 5, J. Dybwad, Kristiania 1924, S. 49.

in einem Kationenaustauscher mit 5%iger Citratlösung (pH 2,75) getrennt. Dabei wurde die in Abb. (14–4) wiedergegebene Elutionskurve erhalten, welche die Anwesenheit des Elements 61 deutlich erkennen läßt. Das Element wurde von den Entdeckern zur Erinnerung an Prometheus Promethium genannt.

Das langlebigste Promethiumisotop ist das Pm–145 (Halbwertzeit 18 a); an zweiter Stelle steht das Pm–147 (Halbwertzeit 2,62 a), das mit einer Spaltausbeute von 2,6% bei der Spaltung des Urans mit thermischen Neutronen auftritt. Außerdem entstehen bei der thermischen Kernspaltung die Promethiumisotope Pm–149 (Halbwertzeit 53 h, Spaltausbeute 1,3%) und Pm–151 (Halbwertzeit 28 h, Spaltausbeute 0,45%). Promethium kann auch durch Bestrahlung von Neodym in einem Reaktor hergestellt werden:

$$
\begin{aligned}
&{}^{146}\mathrm{Nd}\,(n,\gamma)\,{}^{147}\mathrm{Nd} \xrightarrow[11{,}1\,\mathrm{d}]{\beta^-} {}^{147}\mathrm{Pm} \xrightarrow[2{,}62\,\mathrm{a}]{\beta^-} {}^{147}\mathrm{Sm} \\
&{}^{148}\mathrm{Nd}\,(n,\gamma)\,{}^{149}\mathrm{Nd} \xrightarrow[1{,}8\,\mathrm{h}]{\beta^-} {}^{149}\mathrm{Pm} \xrightarrow[53\,\mathrm{h}]{\beta^-} {}^{149}\mathrm{Sm} \\
&{}^{150}\mathrm{Nd}\,(n,\gamma)\,{}^{151}\mathrm{Nd} \xrightarrow[12\,\mathrm{min}]{\beta^-} {}^{151}\mathrm{Pm} \xrightarrow[28\,\mathrm{h}]{\beta^-} {}^{151}\mathrm{Sm} \xrightarrow[87\,\mathrm{a}]{\beta^-} {}^{151}\mathrm{Eu}
\end{aligned}
\tag{14.3}
$$

Zur Abtrennung und Reinigung des Promethiums werden meist Ionenaustauschverfahren benutzt.

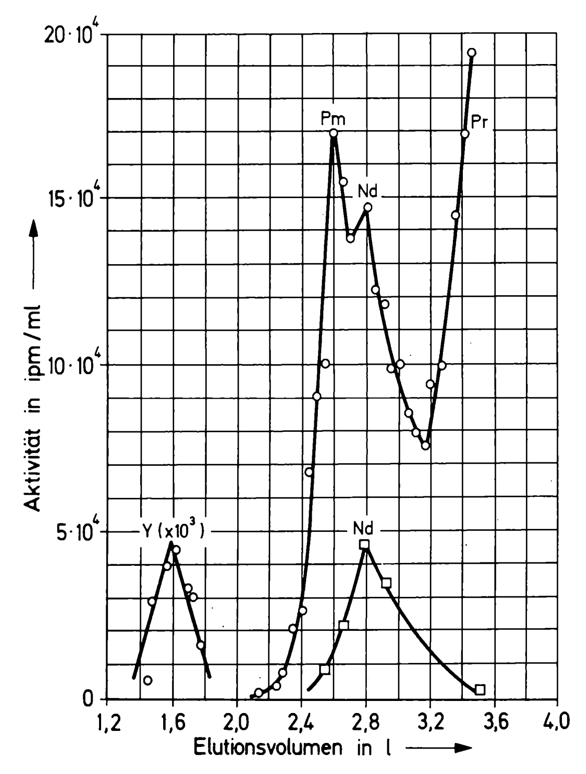


Abb. (14–4) Abtrennung des Promethiums aus Uranspaltprodukten in einer Kationenaustauschersäule durch Elution mit Citratlösung. Aus J. A. MARINSKY, L. E. GLENDENIN u. C. D. CORYELL: J. Amer. chem. Soc. **69** (1947) 2781.

In seinem chemischen Verhalten fügt sich das Promethium in die Reihe der Lanthaniden ein. Die Wertigkeiten der Lanthaniden sind in Abb. (14–5) aufgetragen. Am stabilsten sind die Elektronenkonfigurationen $4f^0$ (La^{3+}), $4f^7$ (Gd^{3+}) und $4f^{14}$ (Lu^{3+}), bei denen die $4f$-Zustände unbesetzt, einfach besetzt bzw. doppelt besetzt sind. Diese Elektronenkonfigurationen werden von den benachbarten Elementen

angestrebt, so daß in erster Linie Cer, aber auch Praseodym und Terbium in der Oxydationsstufe IV anzutreffen sind. Aus denselben Gründen treten Europium, Samarium und Ytterbium in der Oxydationsstufe II auf. Promethium ist ausschließlich dreiwertig.

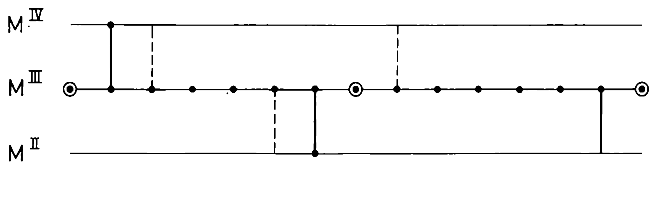


Abb. (14–5) Wertigkeiten der Lanthaniden.

Die Chemie der Lanthaniden hat in den vergangenen Jahren sehr an Bedeutung gewonnen. Dies beruht auf folgenden Ursachen:

a) Die Lanthaniden besitzen zu einem großen Teil hohe Einfangquerschnitte für thermische Neutronen; sie sind deshalb in Kernbrennstoffen, Moderatoren, Kühlmitteln und Reaktorwerkstoffen unerwünscht. Die Reinheitsanforderungen sind hoch. Damit sie erfüllt werden können, sind Untersuchungen über die Chemie der Lanthaniden erforderlich.
b) Die Lanthaniden machen einen Großteil der Spaltprodukte aus. Ihre Abtrennung und Weiterverarbeitung setzen ausreichende Kenntnisse über ihre chemischen Eigenschaften voraus.

Auf die Chemie der Lanthaniden soll hier kurz eingegangen werden, weil sie im Hinblick auf die Actiniden wichtig ist.

Die Ionenradien der Lanthaniden in der Oxydationsstufe III sind in Abb. (14–6) aufgezeichnet; die Farben der Ionen sind in Tab. 14.3. angegeben. Die Abnahme der Ionenradien mit steigender Ordnungszahl ist unter dem Begriff Lanthanidenkontraktion bekannt. Sie beruht darauf, daß in der Reihe der Lanthaniden die $4f$-Schale aufgefüllt wird. Die wachsende Ordnungszahl wirkt sich deshalb auf die unveränderte äußere Elektronenschale in der Weise aus, daß eine Kontraktion stattfindet. Die Ionen der Lanthaniden besitzen charakteristische Absorptionsspektren. Die Elektronenkonfigurationen $4f^0(La^{3+})$, $4f^7(Gd^{3+})$ und $4f^{14}(Lu^{3+})$ sind farblos; die Farbe ist um so intensiver, je weiter die Ionen von diesen Anordnungen entfernt sind (Tab. 14.3.).

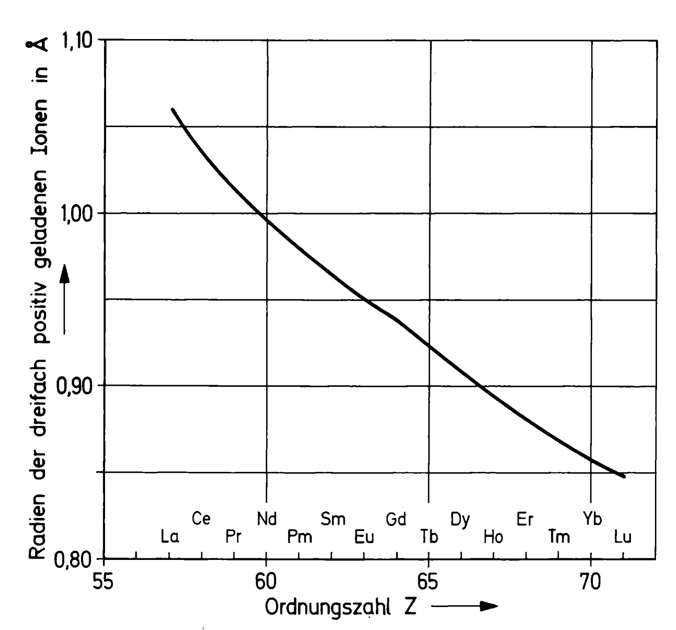


Abb. (14–6) Ionenradien der Lanthaniden. Nach D. H. TEMPLETON u. C. H. PAULEN: J. Amer. chem. Soc. **76** (1954) 5237.

Tabelle 14.3.
Farbe der Ionen der Lanthaniden in der Oxydationsstufe III

Ion	Zahl der 4f-Elektronen	Farbe	
La^{3+}	0	farblos	
Ce^{3+}	1	farblos	
Pr^{3+}	2	gelbgrün	↓
Nd^{3+}	3	rotviolett	Zunahme der Farbintensität
Pm^{3+}	4	rosa	↑
Sm^{3+}	5	gelb	
Eu^{3+}	6	fast farblos	
Gd^{3+}	7	farblos	
Tb^{3+}	8	fast farblos	
Dy^{3+}	9	schwach gelbgrün	
Ho^{3+}	10	gelb	↓
Er^{3+}	11	rosa	Zunahme der Farbintensität
Tm^{3+}	12	blaßgrün	↑
Yb^{3+}	13	farblos	
Lu^{3+}	14	farblos	

Alle Lanthaniden, die ungepaarte 4*f*-Elektronen besitzen, sind paramagnetisch (Abb.(14–7)). Die Kurve für die magnetischen Momente

der Ionen durchläuft ein kleineres und ein größeres Maximum. La^{3+} und Lu^{3+} sind diamagnetisch; Gd^{3+} besitzt hinsichtlich der magnetischen Eigenschaften keine ausgezeichnete Stellung. 4-wertige Ionen besitzen die gleichen Suszeptibilitäten wie die 3-wertigen Ionen des vorausgehenden Elements, 2-wertige Ionen die gleichen Suszeptibilitäten wie die 3-wertigen Ionen des folgenden Elements. Auch daraus geht hervor, daß nur die Anzahl der $4f$-Elektronen für die magnetischen Eigenschaften verantwortlich ist. Bei tiefen Temperaturen werden viele Lanthaniden ferromagnetisch, Gadolinium bereits unterhalb 16 °C.

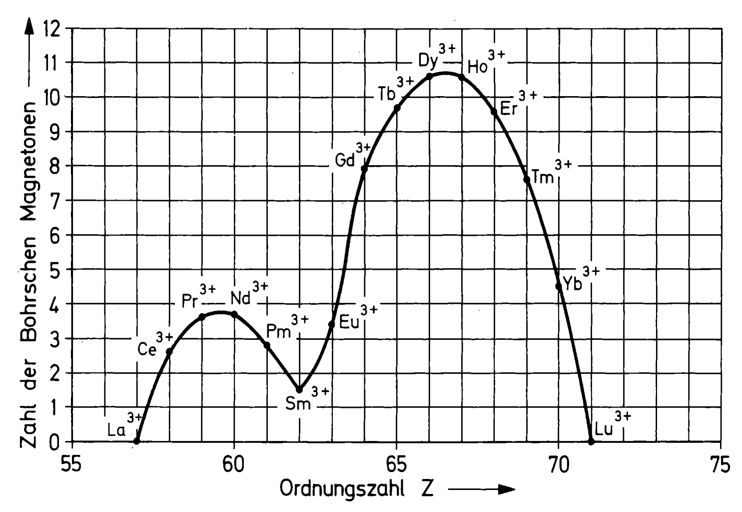


Abb. (14–7) Magnetische Momente der Lanthaniden.

Die Darstellung der Metalle kann durch Reduktion der Halogenide oder Oxide mit Alkalimetallen (Natrium, Kalium) oder Erdalkalimetallen (Magnesium, Calcium, Barium) erfolgen. Die reinsten Produkte werden durch Reduktion der Fluoride oder Chloride mit Calcium oder Barium bei 1500 °C in einem Tiegel aus beständigem Material (z. B. Tantaltiegel) erhalten. Der Schmelzpunkt der Metalle liegt zwischen etwa 800 °C (Cer) und 1700 °C (Lutetium). Die meisten Lanthaniden kristallisieren in der hexagonal dichtesten Kugelpackung, Samarium in einer rhomboedrischen Struktur, Europium kubisch raumzentriert, Ytterbium kubisch flächenzentriert. Alle Metalle sind sehr unedel, oxydieren sich an der Luft und reagieren mit Wasser und verdünnten Säuren.

Hinsichtlich ihrer chemischen Eigenschaften sind sich die Lanthaniden sehr ähnlich. Hydride der Zusammensetzung $MH_{2,7-2,8}$ ent-

stehen durch Einwirkung von Wasserstoff auf die Elemente bei 300 °C. Die Carbide besitzen metallischen Charakter und reagieren mit Wasser unter Bildung von Kohlenwasserstoffen. Die Bildungswärme der Oxide M_2O_3 ist sehr hoch. Die Hydroxide sind relativ starke Basen. Die Basizität nimmt wegen der Lanthanidenkontraktion vom La $(OH)_3$ zum Lu $(OH)_3$ kontinuierlich ab. Durch Einstellung des pH-Wertes zwischen pH 5 und pH 6 ist eine partielle Trennung bei der Hydroxidfällung möglich. Die Fluoride sind im Gegensatz zu den übrigen Halogeniden schwer löslich, ebenso die Oxalate und die Phosphate.

14.4. Gewinnung der Transuranelemente

14.4.1. Bestrahlung mit Neutronen

Die wichtigste Methode zur Gewinnung der Transuranelemente ist die Bestrahlung von Uran mit Neutronen. Diese Methode wurde bald nach der Entdeckung des Neutrons (1932) angewandt, und zwar seit 1934 von FERMI in Italien und HAHN am Max-Planck-Institut für Chemie in Berlin-Dahlem; sie führte aber zunächst nicht zur Gewinnung von Transuranelementen, sondern zur Entdeckung der Kernspaltung durch HAHN und STRASSMANN (1938). Man wußte, daß durch Neutroneneinfang bevorzugt β^--aktive Nuklide entstehen. Beim β^--Zerfall erhöht sich die Ordnungszahl um eine Einheit (zweiter radioaktiver Verschiebungssatz von FAJANS und SODDY, vgl. Abschn. 5.1.). Man durfte deshalb damit rechnen, daß bei der Bestrahlung des Urans mit Neutronen ein Element mit der Ordnungszahl 93 entstehen würde.

Das Prinzip der Bestrahlung mit Neutronen zur Gewinnung von Elementen höherer Ordnungszahlen kann durch das folgende Reaktionsschema beschrieben werden

$$^{A}Z\,(n,\gamma)\,^{A+1}Z \xrightarrow{\beta^-} {}^{A+1}(Z+1). \qquad (14.4)$$

Bei langen Bestrahlungszeiten bilden sich nach diesem Reaktionsschema auch Elemente mit den Ordnungszahlen Z + 2, Z + 3 usw. Die Entstehung von Transuranelementen durch Bestrahlung von U–238 mit Neutronen ist in Abb. (14–8) aufgezeichnet. Bei diesen aufeinanderfolgenden Reaktionen ist die Konkurrenz zwischen dem radioaktiven Zerfall und dem Neutroneneinfang wichtig. Für ein bestimmtes Nuklid gilt:

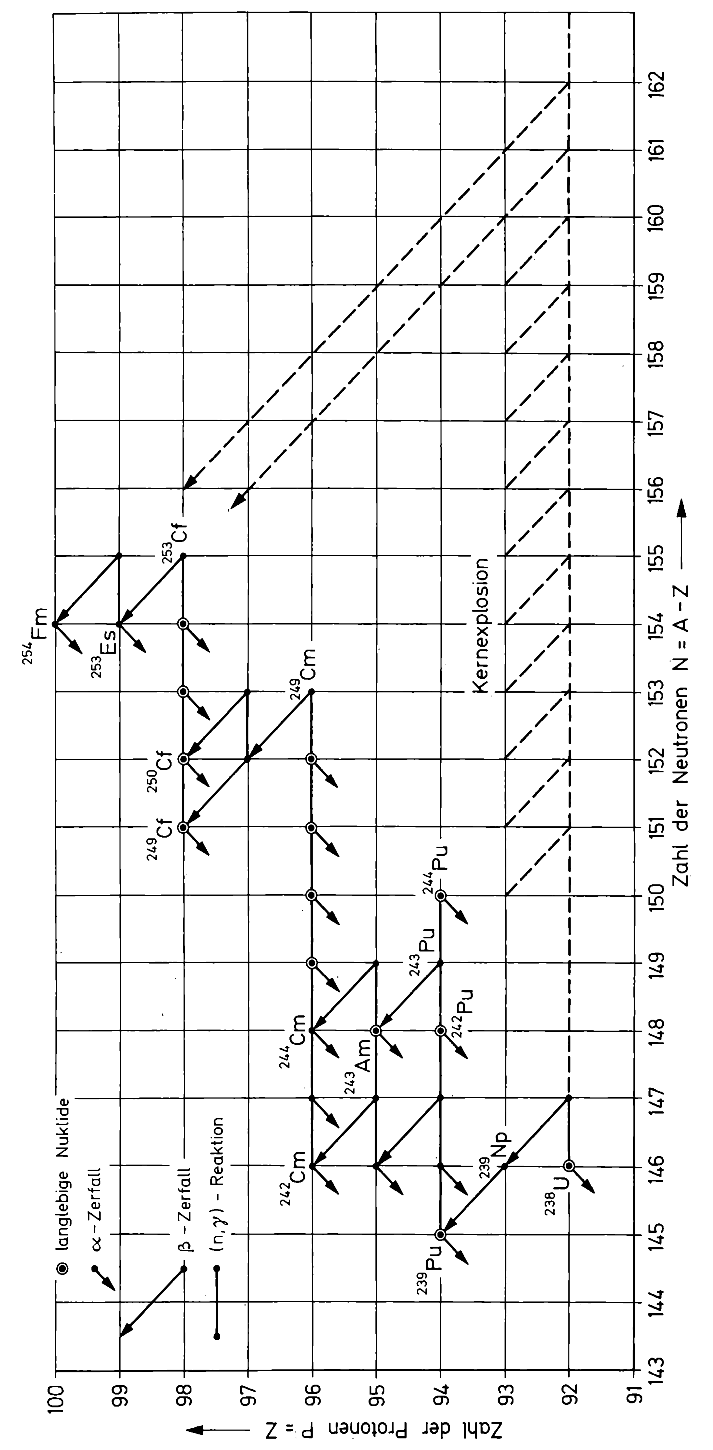


Abb. (14–8) Entstehung von Transuranelementen durch Bestrahlung von U–238 mit thermischen Neutronen.

Zerfallsrate $$-\frac{\mathrm{d}N}{\mathrm{d}t} = \lambda N, \quad (14.5)$$

Geschwindigkeit der Umwandlung durch (n, γ)-Reaktionen

$$-\frac{\mathrm{d}N}{\mathrm{d}t} = \Phi_\mathrm{n}\,\sigma_{\mathrm{n},\gamma}\,N. \quad (14.6)$$

In der Gesamtbilanz ist außerdem die Umwandlung des betreffenden Nuklids durch andere Kernreaktionen — insbesondere durch Kernspaltung — zu berücksichtigen (vgl. dazu Abschn. 8.7.). Aus den Gln. (14.5) und (14.6) folgt, daß der Aufbau schwerer Kerne dann begünstigt ist, wenn

$$\Phi_\mathrm{n}\,\sigma_{\mathrm{n},\gamma} > \lambda. \quad (14.7)$$

Diese Bedingung ist in einem Reaktor mit einem Neutronenfluß $\Phi = 10^{14}\,\mathrm{cm}^{-2}\,\mathrm{s}^{-1}$ und bei einem Wirkungsquerschnitt $\sigma_{\mathrm{n},\gamma} = 1\,\mathrm{b} = 10^{-24}\,\mathrm{cm}^2$ erfüllt, wenn $\lambda < 10^{-10}\,\mathrm{s}^{-1}$ oder die Halbwertzeit $t_{1/2} > 200\,\mathrm{a}$ ist. Somit können unter diesen Bedingungen nur dann schwerere Kerne in größeren Mengen entstehen, wenn die Halbwertzeiten der Zwischenglieder größer als etwa 100 a sind.

Bei den extrem hohen Neutronenflüssen, die während einer Kernexplosion auftreten, bilden sich innerhalb des Bruchteils einer Sekunde durch mehrfachen Neutroneneinfang sehr neutronenreiche Isotope der vorgelegten Nuklide, die sehr rasch durch mehrmaligen β^--Zerfall in Elemente mit hoher Ordnungszahl übergehen. Dieser Weg der Bildung von schweren Elementen bei Kernexplosionen ist in Abb. (14–8) ebenfalls eingezeichnet. Eine Untersuchung der Reaktionsprodukte ist im Anschluß an unterirdische Kernexplosionen möglich.

Folgende Transuranelemente wurden durch Bestrahlung mit Neutronen nach dem in Gl. (14.4) angegebenen Reaktionsschema gewonnen:

Neptunium ($Z = 93$). Dieses Element wurde 1940 von McMillan und Abelson an der Universität von Kalifornien, USA, bei der Untersuchung der Spaltprodukte des Urans entdeckt und in Analogie zum Uran nach dem Planeten Neptun benannt. Das Isotop Np–239 entsteht aus Uran nach der Reaktionsfolge

$$^{238}\mathrm{U}\,(\mathrm{n},\gamma)\,^{239}\mathrm{U} \xrightarrow[23,5\,\mathrm{min}]{\beta^-} {}^{239}\mathrm{Np}. \quad (14.8)$$

Bereits durch Traceruntersuchungen wurde festgestellt, daß das Neptunium chemisch dem Uran ähnlich ist, nicht aber dem Rhenium. Es paßt also nicht in die VII. Gruppe des Periodensystems.

Plutonium (Z = 94). Durch β^--Zerfall des Np–239 bildet sich Pu–239

$$^{238}\mathrm{U}\,(\mathrm{n},\gamma)\,^{239}\mathrm{U} \xrightarrow[23{,}5\,\mathrm{min}]{\beta^-} {}^{239}\mathrm{Np} \xrightarrow[2{,}35\,\mathrm{d}]{\beta^-} {}^{239}\mathrm{Pu} \xrightarrow[2{,}44\cdot 10^4\,\mathrm{a}]{\alpha}. \qquad (14.9)$$

Wegen seiner langen Halbwertzeit und der dadurch bedingten geringen Aktivität wurde das Pu–239 nicht als erstes Plutoniumisotop entdeckt. Vielmehr wurde zunächst das Pu–238 gefunden, das bei der Bestrahlung von Uran mit 16 MeV Deuteronen im Zyklotron entstand:

$$^{238}\mathrm{U}\,(\mathrm{d},2\mathrm{n})\,^{238}\mathrm{Np} \xrightarrow[2{,}1\,\mathrm{d}]{\beta^-} {}^{238}\mathrm{Pu} \xrightarrow[86\,\mathrm{a}]{\alpha}. \qquad (14.10)$$

Seaborg, der dieses Element 1940 entdeckte, hat die Entdeckungsgeschichte sehr anschaulich beschrieben („plutonium story“, vgl. Literaturhinweis Nr. 2). Der α-Strahler Pu–238 konnte zunächst nicht vom Thorium getrennt werden, weil er offenbar in der Oxydationsstufe IV vorlag. Erst nach Oxydation mit Persulfat gelang die Trennung. In Analogie zu den vorausgehenden Elementen wurde das Plutonium nach dem Planeten Pluto benannt. Im Anschluß an das Pu–238 wurde auch das Pu–239, das sich nach Gl. (14.9) bildet, entdeckt, und gewann wegen seiner Spaltbarkeit durch thermische Neutronen sofort große Bedeutung. Nach den Worten Seaborgs wurde die Entdeckung keines anderen Elements der Welt auf so „explosive Weise“ bekanntgegeben wie die des Plutoniums, nämlich durch die Explosion einer Atombombe.

Americium (Z = 95). Dieses Element wurde 1944 von Seaborg und Mitarbeitern entdeckt; es entstand durch Bestrahlung von Plutonium mit Neutronen

$$^{239}\mathrm{Pu}\,(\mathrm{n},\gamma)\,^{240}\mathrm{Pu}\,(\mathrm{n},\gamma)\,^{241}\mathrm{Pu} \xrightarrow[13{,}2\,\mathrm{a}]{\beta^-} {}^{241}\mathrm{Am}. \qquad (14.11)$$

Es wurde in Anlehnung an das Element Europium benannt, das die gleiche Anzahl von f-Elektronen besitzt.

Curium (Z = 96). Dieses Element wurde ebenfalls im Jahre 1944 von SEABORG und Mitarbeitern in Kalifornien entdeckt. Zunächst wurde es durch Bestrahlung von Plutonium mit α-Strahlen erzeugt (vgl. Abschnitt 14.4.2.), später durch Bestrahlung von Americium mit Neutronen

$$^{241}\mathrm{Am}\,(\mathrm{n},\gamma)\,^{242}\mathrm{Am} \xrightarrow[16\,\mathrm{h}]{\beta^-} {}^{242}\mathrm{Cm}. \tag{14.12}$$

Die Benennung erfolgte nach einem Forschernamen (CURIE) — ähnlich wie beim Element Gadolinium, das ebensoviele f-Elektronen besitzt.

Die Elemente mit den Ordnungszahlen Z = 97 und 98 konnten durch Bestrahlung mit Neutronen zunächst nicht hergestellt werden, weil keine β^--aktiven Curiumisotope bekannt waren.

Einsteinium (Z = 99) und Fermium (Z = 100). Diese Elemente wurden 1952/53 von GHIORSO und Mitarbeitern in den USA in der radioaktiven Asche der ersten Wasserstoffbombenexplosion gefunden. Die Untersuchung von Staubproben an ferngesteuerten Flugzeugen gab die ersten Hinweise auf diese Elemente. Dann wurden größere Mengen des Korallenriffs aufgearbeitet, über dem die Wasserstoffbombe explodiert war. DieTrennung und Identifizierung war möglich auf Grund des Verhaltens dieser Elemente bei der Elution aus einer Ionenaustauschersäule. Die Benennung erfolgte zu Ehren EINSTEINS und FERMIS. Später wurden kleine Mengen dieser Elemente auch durch lange Bestrahlung im Reaktor bei hohem Neutronenfluß erhalten. Ihre Entstehung bei der Explosion der Wasserstoffbombe kann durch folgende Gleichungen beschrieben werden:

$$^{238}\mathrm{U} \xrightarrow{15\,\times\,(\mathrm{n},\gamma)} {}^{253}\mathrm{U} \xrightarrow{7\,\times\,\beta^-} {}^{253}\mathrm{Es} \tag{14.13}$$

$$^{238}\mathrm{U} \xrightarrow{17\,\times\,(\mathrm{n},\gamma)} {}^{255}\mathrm{U} \xrightarrow{8\,\times\,\beta^-} {}^{255}\mathrm{Fm} \tag{14.14}$$

14.4.2. Bestrahlung mit α-Teilchen

Die Bestrahlung mit Neutronen nach Gl. (14.4) und auch die Bestrahlung mit Deuteronen führen bei höheren Ordnungszahlen nicht mehr zum Erfolg, weil viele Neutronen oder Deuteronen aufgenommen werden müssen, um schwere Elemente aufzubauen. Beim Einfang

eines α-Teilchens wird die Ordnungszahl aber schon um zwei Einheiten erhöht; wenn das entstehende Nuklid eine β^--Umwandlung erleidet, entsteht ein Nuklid, dessen Ordnungszahl um drei Einheiten höher ist. Die häufigste Reaktion ist eine (α, n)-Reaktion:

$$^{A}Z\,(\alpha, n)\,^{A+3}(Z+2) \xrightarrow{\beta^-} {}^{A+3}(Z+3). \qquad (14.15)$$

Daneben finden auch (α, 2n)-Reaktionen statt.

Durch Bestrahlung mit 35 MeV α-Teilchen aus einem Zyklotron gewannen SEABORG und Mitarbeiter folgende Elemente:

Americium (Z = 95) im Jahre 1944/45

$$^{238}U\,(\alpha, n)\,^{241}Pu \xrightarrow[13{,}2\,a]{\beta^-} {}^{241}Am, \qquad (14.16)$$

Curium (Z = 96) ebenfalls im Jahre 1944

$$^{239}Pu\,(\alpha, n)\,^{242}Cm \xrightarrow[163\,d]{\alpha} {}^{238}Pu. \qquad (14.17)$$

Das Cm–242 wurde auf Grund des α-Zerfalls und der bekannten Eigenschaften des Tochternuklids Pu–238 identifiziert.

Nach Herstellung von Milligramm-Mengen Am–241 durch CUNNINGHAM konnten nach diesem Reaktionsschema auch die nächst höheren Elemente gewonnen werden, die durch Bestrahlung mit Neutronen nicht darstellbar waren (vgl. Abschn. 14.4.1.):

Berkelium (Z = 97) im Jahre 1949

$$^{241}Am\,(\alpha, 2n)\,^{243}Bk. \qquad (14.18)$$

Dieses Element wurde ebenso wie die vorausgehenden Elemente in Analogie zum Terbium nach einer Stadt benannt.

Californium (Z = 98) im Jahre 1950

$$^{242}Cm\,(\alpha, n)\,^{245}Cf. \qquad (14.19)$$

Mendelevium (Z = 101) im Jahre 1955

$$^{253}Es\,(\alpha, n)\,^{256}Md. \qquad (14.20)$$

Die größte Schwierigkeit bei der Darstellung des Mendeleviums bestand darin, daß nur $N = 10^9$ Atome Einsteinium zur Verfügung standen, die im Reaktor erzeugt worden waren. Dies entspricht einer Menge von ungefähr $4 \cdot 10^{-13}$ g. Da der Wirkungsquerschnitt σ für die (α, n)-Reaktion etwa 1 mb beträgt, war bei einem Fluß an α-Teilchen $\Phi_\alpha = 10^{14}\,\mathrm{cm^{-2}\,s^{-1}}$ und einer Bestrahlungszeit $t = 10^4$ s eine Ausbeute von $N \Phi_\alpha \sigma t \approx 1$ Atom pro Experiment zu erwarten. Um diese einzelnen Atome nachweisen zu können, mußte eine neue Technik entwickelt werden, die man als „Rückstoßtechnik" bezeichnen kann (Abb. (14–9)). Das Einsteinium wurde auf einer dünnen Goldfolie

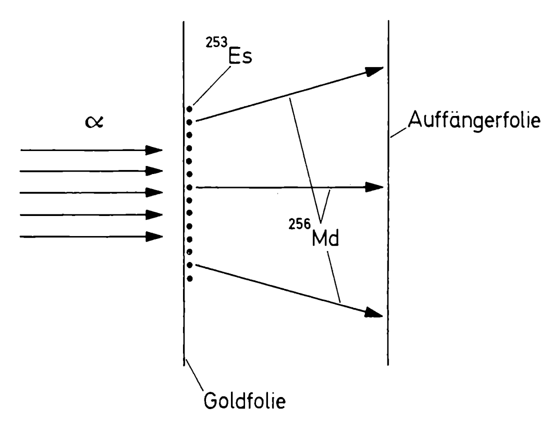


Abb. (14–9) Gewinnung von Mendelevium mit Hilfe der Rückstoßtechnik (schematisch).

elektrolytisch abgeschieden. Von der anderen Seite trafen die α-Teilchen auf. Durch den Rückstoß infolge der (α, n)-Reaktion wurde das Mendelevium auf eine zweite Folie geschleudert, die als Auffängerfolie („catcher") diente. Die Auffängerfolie wurde aufgelöst und chemisch analysiert. Bei 8 Experimenten konnten insgesamt 17 Atome Mendelevium nachgewiesen werden. Zur Identifizierung des Mendeleviums diente seine Umwandlung zu Fm–256, dessen Eigenschaften bekannt waren:

$$^{256}\mathrm{Md} \xrightarrow[1{,}5\,\mathrm{h}]{\mathrm{K}} {}^{256}\mathrm{Fm} \xrightarrow[2{,}7\,\mathrm{h}]{\mathrm{Sp}} . \qquad (14.21)$$

Die Bezeichnung Mendelevium wurde zu Ehren von MENDELEJEFF gewählt.

Das Element 102 konnte wegen der kurzen Halbwertzeit der Fermium-Isotope nicht durch Bestrahlung mit α-Teilchen gewonnen werden. Damit war auch der Anwendung des Reaktionsschemas (14.15) eine Grenze gesetzt. Die Bestrahlung des Fermiums mit Neutronen schied einerseits wegen der kurzen Halbwertzeit der Fermium-Isotope aus, andererseits auch deshalb, weil erst bei der Massenzahl 259 mit einem β^--Zerfall zu rechnen war.

14.4.3. Bestrahlung mit schwereren Ionen

Um Elemente höherer Ordnungszahl herzustellen, erscheint es sinnvoll, von solchen Elementen auszugehen, die in größeren Mengen verfügbar sind, und diese mit Ionen der Ordnungszahl $Z' > 2$ zu beschießen. Auf diese Weise können Elemente gewonnen werden, deren Ordnungszahl um Z' Einheiten höher ist, wenn Z' die Ordnungszahl des Geschosses ist. Das Schema dieser Reaktion läßt sich folgendermaßen formulieren:

$$^{A}Z + {}^{A'}Z' \longrightarrow {}^{A+A'-x}(Z + Z') + x\ n. \tag{14.22}$$

Je höher Z' ist, desto geringer ist im allgemeinen der Wirkungsquerschnitt. Außerdem müssen die Geschosse mit wachsender Ordnungszahl immer höhere Energie besitzen, damit sie die Coulombsche Abstoßung des Kerns überwinden können (vgl. Abschn. 8.3.). Der erste Bericht über die Entdeckung des Elements 102 kam 1957 aus Stockholm. Das Element 102 wurde Nobelium genannt. Die Ergebnisse dieses Berichts wurden allerdings in den USA und der UdSSR nicht bestätigt. In Berkeley, USA, wurde 1958 folgende Reaktion ausgeführt:

$$\begin{array}{l} {}^{246}_{96}\mathrm{Cm} + {}^{12}_{6}\mathrm{C} \longrightarrow {}^{254}102 + 4\,\mathrm{n} \\ \qquad\qquad\qquad\qquad \lfloor\xrightarrow[55\,\mathrm{s}]{\alpha} {}^{250}_{100}\mathrm{Fm} \end{array} \tag{14.23}$$

Die Technik der Darstellung wurde durch Anwendung eines Fließbandes weiterentwickelt (Abb. (14–10)). Bei dieser „Rückstoß-Fließband-Technik" gelangen die bei der Kernreaktion entstehenden Rückstoßatome auf ein Fließband, das im allgemeinen eine negative Ladung besitzt. Beim α-Zerfall erfahren die Atome nochmals einen Rückstoß und treffen dabei auf eine Auffängerfolie auf. An Stelle der Auf-

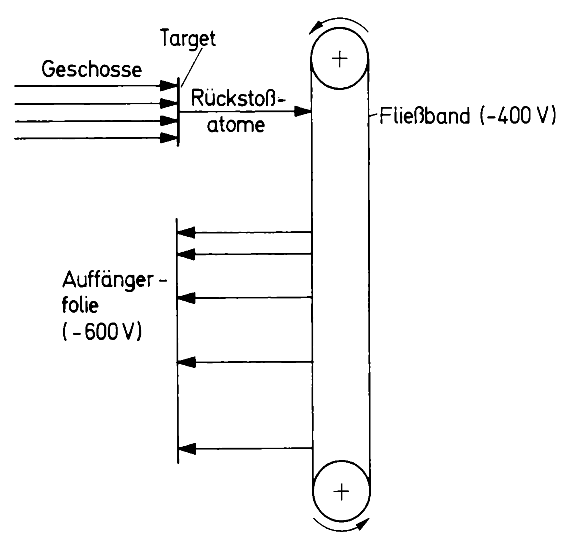


Abb. (14–10) Gewinnung von Transuranelementen mit Hilfe der Rückstoß-Fließband-Technik, auch Doppel-Rückstoß-Technik genannt (schematisch).

fängerfolie können auch Detektoren verwendet werden. Aus der Geschwindigkeit des Bandes und der Aktivitätsverteilung in den Auffängerfolien bzw. Detektoren ergibt sich die Halbwertzeit des entstandenen Nuklids.

Mit der gleichen Technik wurde im Jahre 1961 in Kalifornien durch GHIORSO, SEABORG u. a. das Element 103 nachgewiesen, das nach dem Erfinder des Zyklotrons LAWRENCE den Namen Lawrencium (Symbol Lr) erhielt:

$$^{252}_{98}\mathrm{Cf}(^{11}_{5}\mathrm{B}, 6\,\mathrm{n})\,^{257}_{103}\mathrm{Lr} \xrightarrow[8\,\mathrm{s}]{\alpha} \qquad (14.24)$$

Das Element 104 wurde 1964 nach einer ähnlichen Methode im Kernforschungszentrum Dubna der UdSSR durch Beschuß von Pu–242 mit Neonionen von 114 MeV gewonnen (FLEROV und Mitarbeiter):

$$^{242}_{94}\mathrm{Pu} + ^{22}_{10}\mathrm{Ne} \longrightarrow ^{260}104 + 4\,\mathrm{n}. \qquad (14.25)$$

Die Ausbeute war recht klein. Innerhalb einer Bestrahlungszeit von 5 Stunden — d. h. pro 10^{15} bis 10^{16} auftreffenden Neonionen — wurde 1 Atom des Elements 104 erzeugt. Als Name wurde Kurtschatovium vorgeschlagen, zu Ehren des russischen Physikers KURTSCHATOV. Die

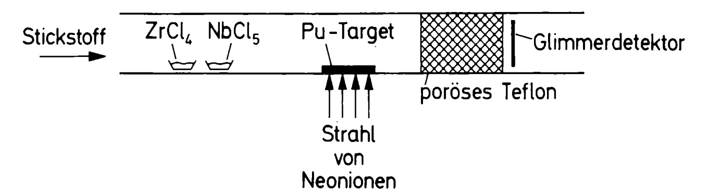


Abb. (14–11) Gasstromtechnik zur Untersuchung des chemischen Verhaltens des Elements 104 (schematisch; $ZrCl_4$ und $NbCl_5$ dienen als Chlorierungsmittel und Träger).

Halbwertzeit der Spontanspaltung wurde zu 0,3 s gefunden. Das Element 104 verdient deshalb besonderes Interesse, weil es die Elektronenkonfiguration $5f^{14}\,6d^2\,7s^2$ besitzen sollte und damit als Ekahafnium nicht mehr zur Gruppe der Actiniden zählt. Die chemischen Eigenschaften wurden durch Untersuchung des Verhaltens im heißen Gasstrom geprüft (vgl. Abb. (14–11)); das Chlorid des Elements 104 verhielt sich dabei wie $ZrCl_4$ und $HfCl_4$, nicht wie $CmCl_3$ und $CfCl_3$.

14.4.4. Möglichkeiten der Erweiterung des Periodensystems

Der Darstellung schwererer Transuranelemente wird durch die Lebensdauer der Nuklide eine Grenze gesetzt. In Abb. (14–12) sind die Halbwertzeiten der langlebigsten Isotope der Elemente 90 bis 100 eingetragen. Bis etwa zur Ordnungszahl $Z = 100$ wird die Halbwertzeit durch den α-Zerfall bzw. β-Zerfall bestimmt, bei Ordnungszahlen oberhalb $Z = 100$ in immer stärkerem Maße durch die Spontanspaltung. Durch Extrapolation der Kurve in Abb. (14–12) kann die Halbwertzeit der Nuklide mit höheren Ordnungszahlen abgeschätzt werden. Beim Element 106 sind danach Halbwertzeiten von maximal einigen Sekunden zu erwarten, beim Element 110 maximal einige Millisekunden.

Auf Grund theoretischer Überlegungen gilt die in Abb. (14–12) aufgezeichnete Abhängigkeit der Halbwertzeit von der Ordnungszahl nur so lange, als keine magischen Zahlen auftreten. Folgende magische Zahlen werden vorausgesagt:

$$Z = 114, 126, 164, 228;$$
$$N = 164, 178, 184, 228.$$

Am interessantesten sind die doppelt magischen Nuklide, die sowohl eine magische Anzahl von Protonen als auch eine magische Anzahl von Neutronen enthalten, z. B.

$$Z = 114;\ A = 278, 292, 298;$$
$$Z = 126;\ A = 290, 304, 310.$$

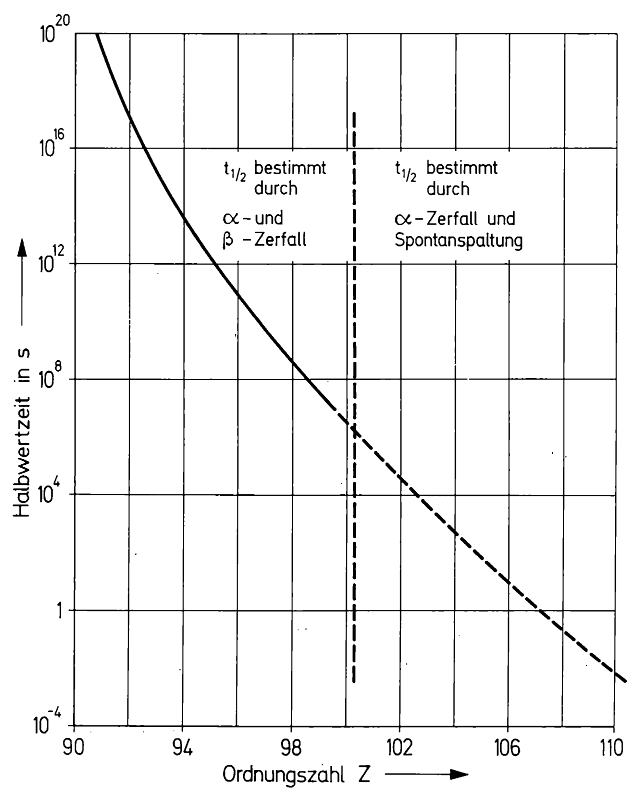


Abb. (14–12) Halbwertzeiten der langlebigsten Isotope der Elemente 90 bis 100 und extrapolierte Halbwertzeiten für Elemente höherer Ordnungszahlen.

Bei diesen Nukliden sind Inseln relativ hoher Stabilität zu erwarten, die in Abb. (14–13) eingezeichnet sind. Die Halbwertzeiten für die Spontanspaltung werden für diese Inseln relativ hoher Stabilität zu etwa 10^8 s vorausgesagt, die Halbwertzeiten für den α-Zerfall sollten größer sein als 10^{-4} s. Die schweren Kerne werden auch als „Superkerne" bezeichnet. Bei dem Element mit der Ordnungszahl 114 handelt es sich um Ekablei (7. Periode des Periodensystems), bei dem Element mit der Ordnungszahl 126 um Ekaplutonium (8. Periode des Periodensystems). Sofern die Halbwertzeiten größer sind als etwa 0,1 s, sind auch chemische Untersuchungen denkbar, wobei die bei der Besprechung des Elements 104 erläuterte Gasstromtechnik (vgl. Abb. (14–11)) besondere Bedeutung besitzen wird. Interessant ist die Möglichkeit, daß g-Zustände mit Elektronen besetzt werden.

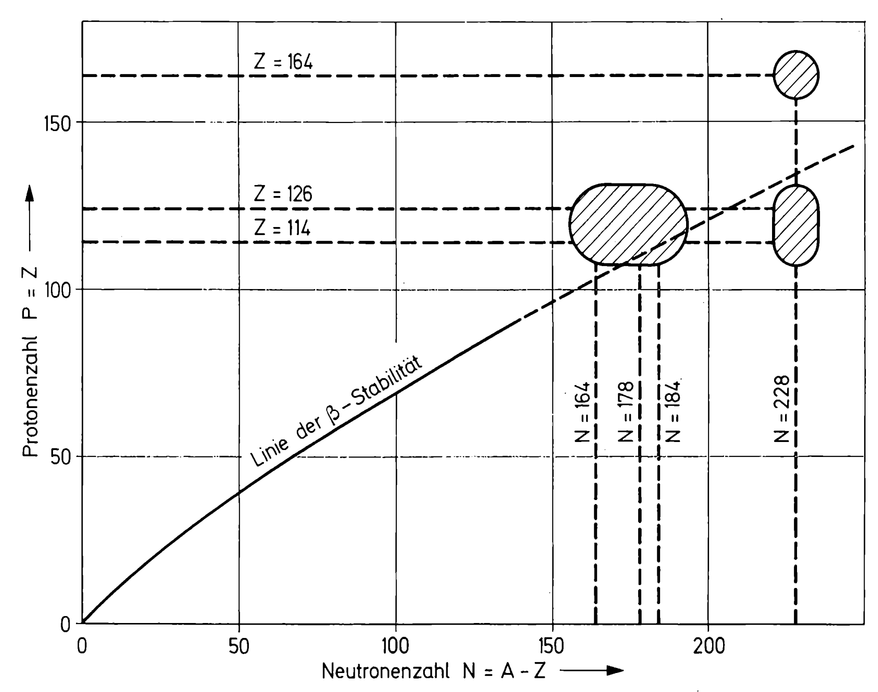


Abb. (14–13) Inseln relativ hoher Stabilität, die auf Grund von extrapolierten magischen Zahlen zu erwarten sind.

Die aussichtsreichste Reaktion zur Herstellung von Superkernen ist der Beschuß mit schweren Ionen. Die hohe Anregungsenergie der Reaktionsprodukte wird wahrscheinlich bevorzugt durch Emission von Neutronen und γ-Quanten abgegeben, sofern nicht eine Spaltung eintritt. Die Ausbeute an den gewünschten Reaktionsprodukten mit höherer Ordnungszahl ist umso größer, je leichter die Geschosse sind. Während der Wirkungsquerschnitt für eine Reaktion von schweren Kernen mit α-Teilchen nach Gl. (14.22) etwa von der Größenordnung 1 mb ist, sinkt er für O–16 ($Z' = 8$) auf maximal etwa 1 μb und für Ne–20 ($Z' = 10$) auf maximal etwa 1 nb ab. Die erforderliche Energie der Geschosse steigt mit ihrer Ordnungszahl an (vgl. Abschn. 8.3.); damit steigt aber auch die Anregungsenergie des Zwischenkerns und infolgedessen die Wahrscheinlichkeit der Spaltung.

Von großem Interesse sind Transferreaktionen, bei denen ein mehr oder weniger großer Teil der Nukleonen übertragen wird (vgl. Abschn. 8.5.). Eine andere Möglichkeit ist die Fusion von mittelschweren Kernen; die Gefahr der Kernspaltung ist dabei am geringsten, wenn die Reaktionspartner ungefähr gleich schwer sind, weil dann die Anre-

gungsenergie der Reaktionsprodukte verhältnismäßig niedrig ist. Z. B. ist folgende Reaktion denkbar:

$$^{180}_{72}\mathrm{Hf} + {}^{132}_{54}\mathrm{Xe} \longrightarrow ({}^{312}126) \longrightarrow {}^{308}126 + 4\,\mathrm{n} \qquad (14.26)$$

Die erforderliche Mindestenergie der Xenonionen beträgt 708 MeV oder 5,4 MeV/Nukleon. Besonders interessant ist die Verschmelzung von zwei schweren Kernen, z. B. zwei Urankernen:

$$^{238}_{92}\mathrm{U} + {}^{238}_{92}\mathrm{U} \longrightarrow ({}^{476}184) \begin{cases} \nearrow {}^{278}114 \quad \text{u.a.} \\ \searrow {}^{304}126 \quad \text{u.a.} \end{cases} \qquad (14.27)$$

Die Mindestenergie des als Geschoß benutzten Uranions muß 1500 MeV betragen oder 6 MeV/Nukleon. Wahrscheinlich ist es einfacher, zwei beschleunigte Uranionen aufeinanderprallen zu lassen. Es ist anzunehmen, daß das Produkt der Fusion sich spaltet, wobei wahrscheinlich doppelt magische Spaltprodukte bevorzugt sind, wie in Gl. (14.27) angedeutet.

Zur Untersuchung solcher Fusionsreaktionen im Hinblick auf den Aufbau von Superkernen ist ein Schwerionenbeschleuniger erforderlich. Der in den USA projektierte Schwerionenbeschleuniger führt den Namen „Omnitron".

14.5. Eigenschaften der Actiniden

14.5.1. Kerneigenschaften

Alle Actiniden sind Radioelemente (vgl. Tab. 14.1. und 14.2.). Nur die Elemente Thorium und Uran sind so langlebig, daß ihre Radioaktivität bei der chemischen oder technischen Handhabung gelegentlich vernachlässigt werden kann. Actinium und Protactinium treten in kleinen Mengen als Folgeprodukte des Urans und des Thoriums auf (vgl. Tab. 11.2.). In extrem kleinen Mengen sind auch Neptunium und Plutonium in Uranerzen vorhanden. Sie entstehen aus Uran durch Einfang von Neutronen, die aus der kosmischen Strahlung stammen. Die Mengenverhältnisse betragen:

$$\text{Np–237/U–238} \approx 10^{-12}, \quad \text{Pu–239/U–238} \approx 10^{-11}.$$

Die Harkinssche Regel tritt auch bei den Actiniden deutlich in Erscheinung, wenn man den Logarithmus der Halbwertzeit der langlebigsten Isotope als Funktion der Ordnungszahl aufzeichnet (Abb. (14–14)). Oberhalb des Berkeliums bricht die Kurve ab, weil die Elemente hier instabil werden und noch nicht genügend Daten vorliegen.

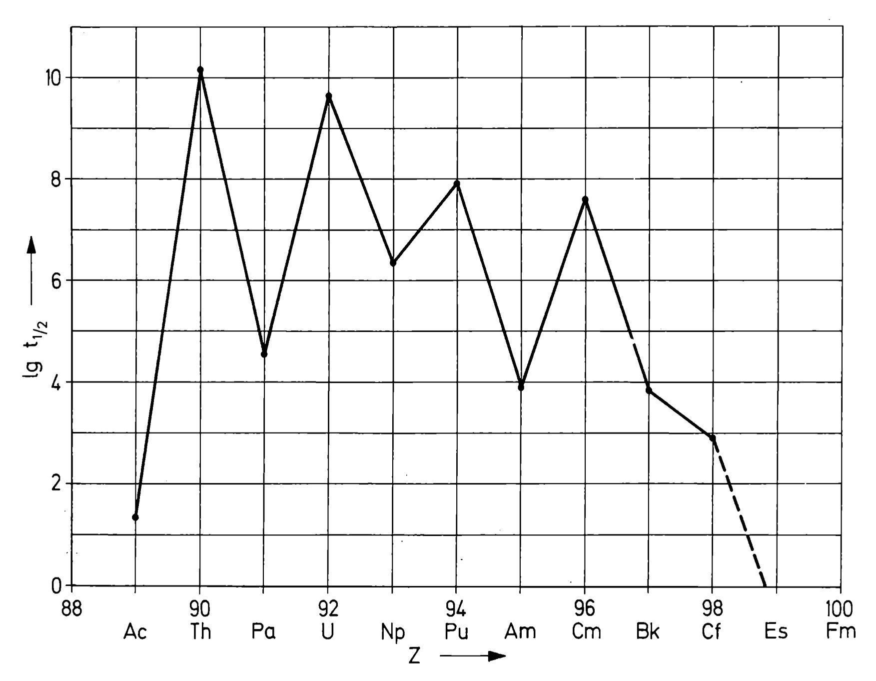


Abb. (14–14) Logarithmus der Halbwertzeit (Halbwertzeit in Jahren) der langlebigsten Isotope der Actiniden als Funktion der Ordnungszahl.

Charakteristisch für die höheren Actiniden ist ihre Neigung zu Spontanspaltung (vgl. Tab. 7.2. und Abschn. 7.5.). Diese tritt beim Element Fermium bereits in den Vordergrund; die Halbwertzeit für die Spontanspaltung des Fm–256 beträgt nur 2,7 h. Die Möglichkeit der Spaltung durch thermische Neutronen ist bei vielen Nukliden der Actiniden stark ausgeprägt. In Abb. (14–15) ist das Verhältnis der Wirkungsquerschnitte für die Spaltung und den Neutroneneinfang als Funktion der Differenz zwischen der Neutronenbindungsenergie und der Aktivierungsenergie für die Spaltung aufgezeichnet. Bei dieser Darstellung liegen die Werte für alle Nuklide annähernd auf einer Geraden. Die Nuklide U–235, U–233 und Pu–239, die als Kernbrennstoffe große praktische Bedeutung besitzen, sind besonders gekennzeichnet.

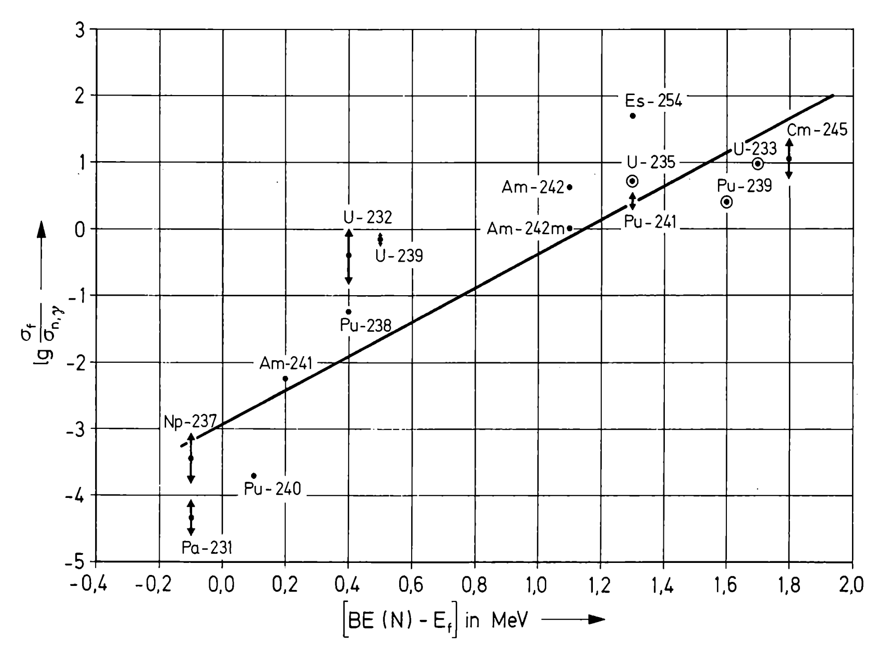


Abb. (14–15) Verhältnis der Wirkungsquerschnitte für die Spaltung durch thermische Neutronen (σ_f) und für den Neutroneneinfang ($\sigma_{n,\gamma}$) für verschiedene Nuklide der Actiniden als Funktion der Differenz zwischen der Neutronenbindungsenergie BE(N) und der Aktivierungsenergie für die Spaltung E_f. Nach G. T. SEABORG: The Transuranium Elements. Yale University Press 1958; Addison-Wesley Publ. Comp., Reading, Mass., S. 166/167; S. 240/241.

14.5.2. Wertigkeiten und Bindungsverhältnisse

In der Reihe der Actiniden werden die $5f$-Zustände in steigendem Umfang mit Elektronen besetzt (Tab. 14.4.). Während bei den Lanthaniden höchstens zwei f-Elektronen für die chemische Bindung zur Verfügung stehen (z. B. bei Cer(IV)-Verbindungen), sind bei den Actiniden bis zu vier f-Elektronen für die chemische Bindung zugänglich (z. B. bei Uran (VI)-Verbindungen). Dies beruht darauf, daß die energetischen Unterschiede zwischen den $5f$- und den $6d$-Zuständen kleiner sind als zwischen den $4f$- und den $5d$-Zuständen, außerdem sind die $5f$-Elektronen durch die inneren Elektronenschalen stärker gegenüber dem Kern abgeschirmt als die $4f$-Elektronen. Mit steigender Ordnungszahl rücken die $5f$- und die $6d$-Zustände energetisch immer stärker auseinander. Diese Besonderheit der Actiniden kommt in der Skala der Wertigkeiten deutlich zum Ausdruck (Abb. (14–16)). Die Analogie zu den Lanthaniden tritt im übrigen beim Vergleich der

Tabelle 14.4.
Elektronenkonfiguration der Actiniden (gasförmig)

Ordnungszahl	Symbol	Name des Elements	Elektronenkonfiguration
89	Ac	Actinium	$6d\,7s^2$
90	Th	Thorium	$6d^2\,7s^2$
91	Pa	Protactinium	$5f^2\,6d\,7s^2$ (oder $5f^1\,6d^2\,7s^2$)
92	U	Uran	$5f^3\,6d\,7s^2$
93	Np	Neptunium	$5f^5\,7s^2$ (oder $5f^4 6d\,7s^2$)
94	Pu	Plutonium	$5f^6\,7s^2$
95	Am	Americium	$5f^7\,7s^2$
96	Cm	Curium	$5f^7\,6d\,7s^2$
97	Bk	Berkelium	$5f^8\,6d\,7s^2$ (oder $5f^9\,7s^2$)
98	Cf	Californium	$5f^{10}\,7s^2$
99	Es	Einsteinium	$5f^{11}\,7s^2$
100	Fm	Fermium	$5f^{12}\,7s^2$
101	Md	Mendelevium	$5f^{13}\,7s^2$
102	No	Nobelium	$5f^{14}\,7s^2$
103	Lr	Lawrencium	$5f^{14}\,6d\,7s^2$

Abbn. (14–16) und (14–5) hervor. Die Bezeichnung Actiniden, die 1925 von GOLDSCHMIDT vorgeschlagen wurde, ist auf Grund dieses Vergleichs gerechtfertigt. Ein neuerer Vorschlag ist der Name Actinoide. Wichtig ist, daß man die erwähnten besonderen Eigenschaften der 5*f*-Elektronen — im Vergleich zu den 4*f*-Elektronen — im Auge behält. Auf der Beteiligung der 5*f*-Elektronen an der chemischen Bindung beruhen einige Besonderheiten im chemischen Verhalten der Actiniden; wir werden darauf noch zurückkommen.

Die Ionen der Actiniden zeigen ebenso wie die Ionen der Lanthaniden eine Kontraktion, wenn man die gleiche Oxydationsstufe ins Auge

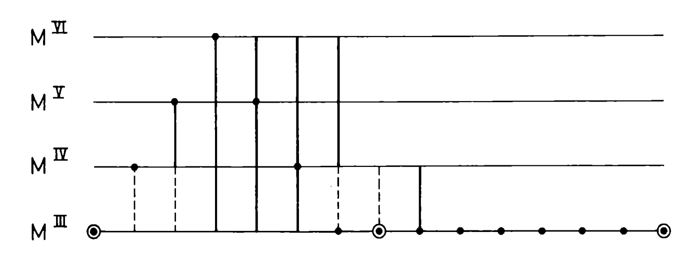


Abb. (14–16) Wertigkeiten der Actiniden. Die Elektronenkonfigurationen $5\,f^0$, $5\,f^7$ und $5f^{14}$ sind besonders herausgehoben.

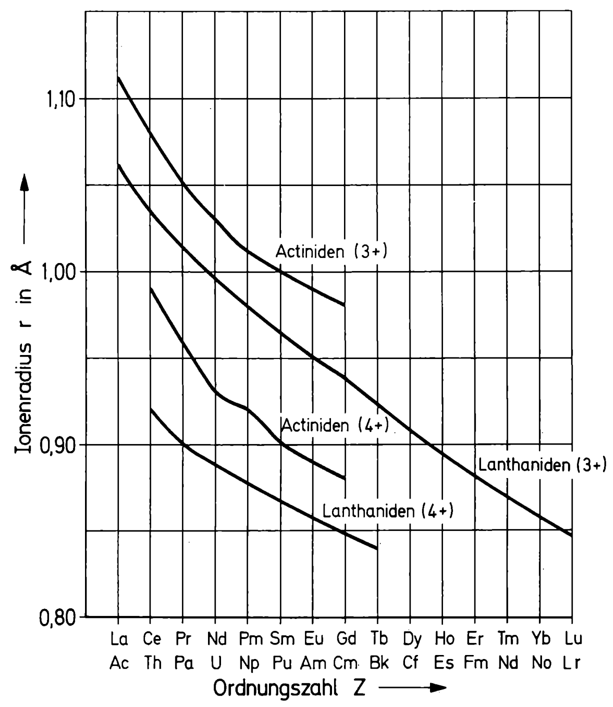


Abb. (14–17) Actinidenkontraktion (Ionenradius als Funktion der Ordnungszahl). Nach G. T. SEABORG: The Transuranium Elements. Yale University Press 1958; Addison-Wesley Publ. Comp., S. 137.

faßt. Diese Actinidenkontraktion ist in Abb. (14–17) aufgezeichnet. Sie kommt ähnlich zustande wie die Lanthanidenkontraktion. Die Farbe der Ionen zeigt, ähnlich wie bei den Lanthaniden, eine Vertie-

Tabelle 14.5.
Farbe der Ionen der Actiniden

Element	M^{3+}	M^{4+}	MO_2^{+}	MO_2^{++}
Actinium	farblos	—	—	—
Thorium	—	farblos	—	—
Protactinium	—	farblos	farblos	—
Uran	rotbraun	grün	—	gelb
Neptunium	blau bis purpur	gelbgrün	grün	rosa
Plutonium	violett	orange	rötlich	orange
Americium	rosa	rosa*)	gelb	gelblich
Curium	farblos	blaßgelb*)	—	—

*) als Fluorokomplex

fung zwischen den Elektronenkonfigurationen $5f^0$ und $5f^7$. In Tab. 14.5. ist die Farbe der Ionen für Ac^{3+} bis Cm^{3+} sowie der Ionen M^{4+}, $MO_2{}^+$ und $MO_2{}^{2+}$ der Actiniden angegeben. Die Farbe der Ionen der höheren Actiniden ist nicht bekannt, da sie nicht in genügend hohen Konzentrationen vorliegen. Auch hinsichtlich der magnetischen Eigenschaften besteht Analogie zwischen den Actiniden und den Lanthaniden. Die magnetischen Suszeptibilitäten der Actiniden liegen auf der gleichen Kurve wie die der Lanthaniden (Abb. (14–7)), wenn man isoelektronische Ionen miteinander vergleicht, z. B.

$$U^{VI} \triangleq Pa^{V} \triangleq Th^{IV} \triangleq Ac^{III} \triangleq La^{III}$$

$$Pu^{VI} \triangleq Np^{V} \triangleq U^{IV} \triangleq Pa^{III} \triangleq Pr^{III}$$

14.5.3. Eigenschaften der Metalle

Die Actiniden sind ebenso wie die Lanthaniden sehr unedle elektropositive Metalle. Die frischen silberglänzenden Oberflächen oxydieren sich sehr rasch an der Luft. In Form von feinem Pulver sind die Actiniden pyrophor. Zur Darstellung der Metalle aus den Verbindungen müssen kräftige Reduktionsmittel angewandt werden, z. B. die Reduktion der Halogenide mit Calcium oder Barium bei etwa 1200 °C, die Schmelzflußelektrolyse der Halogenide oder das van Arkel-Verfahren (Abscheidung an einem heißen Draht). Bevorzugt wird meist die Reduktion der schwerlöslichen Fluoride mit Calcium oder Barium, z. B.

$$PuF_4 + 2\,Ca \longrightarrow Pu + 2\,CaF_2. \qquad (14.28)$$

Die Reduktion mit Calcium findet auch in der Technik Verwendung zur Gewinnung von Uran oder Plutonium (vgl. Abschn. 11.3.). Wegen der hohen Dichte der Metalle im Vergleich zur Dichte der Verbindungen, die bei der Reaktion eingesetzt werden, erhält man einen verhältnismäßig kleinen Metallregulus.

Die Eigenschaften der Metalle sind in Tab. 14.6. zusammengestellt. Bemerkenswert ist neben der hohen Dichte des Urans, Neptuniums und Plutoniums und dem hohen Schmelzpunkt der Elemente Thorium und Protactinium die Vielzahl der Modifikationen, die bei Uran, Neptunium und Plutonium auftritt. Die bei Raumtemperatur stabilen Modifikationen zeichnen sich durch niedrige Symmetrie aus und sind anisotrop. Dies ist für Metalle eine Ausnahme. Das Plutonium kristallisiert sogar bei Zimmertemperatur in einer monoklinen Modifika-

Tabelle 14.6.
Eigenschaften der Actinidenmetalle

Element	Schmp. in °C	Phase	Struktur	Dichte
Ac	1100 ± 50	—	kubisch flächenzentriert	—
Th	1750	α (bis 1400°)	kubisch flächenzentriert	11,72 (25 °C)
		β (1400° – 1750°)	kubisch raumzentriert	—
Pa	1873	—	tetragonal	15,37
U	1132	α (bis 668°)	orthorhombisch	19,04 (25 °C)
		β (668 – 774°)	tetragonal	18,11 (720 °C)
		γ (774 – 1132°)	kubisch raumzentriert	18,06 (805 °C)
Np	637	α (bis 280°)	orthorhombisch	20,45 (25 °C)
		β (280 – 577°)	tetragonal	19,36 (313 °C)
		γ (577 – 637°)	kubisch	18,00 (600 °C)
Pu	639,5	α (bis 122°)	monoklin	19,74 (25 °C)
		β (122 – 203°)	monoklin raumzentriert	17,77 (150 °C)
		γ (203 – 317°)	orthorhombisch	17,19 (210 °C)
		δ (317 – 453°)	kubisch flächenzentriert	15,92 (320 °C)
		δ' (453 – 477°)	tetragonal	15,99 (465 °C)
		ε (477 – 640°)	kubisch raumzentriert	16,48 (500 °C)
Am	995	α (bis $\lessapprox$ 600°)	hexagonal	13,67 (20 °C)
Cm	1340	—	hexagonal	—

tion. Die Eigenschaften des Americiums und der folgenden Elemente entsprechen wieder den Eigenschaften der Lanthaniden. Man führt diese Besonderheiten der Struktur, die man sonst bei Metallen nicht findet, auf den Einfluß der *f*-Elektronen zurück.

14.5.4. Verbindungen der Actiniden

Die Verbindungen der Oxydationsstufe III ähneln in ihrem chemischen Verhalten denen der Lanthaniden. Thorium ist allerdings in der Oxydationsstufe III nicht stabil. U^{III}, Np^{III} und Pu^{III} sind in wässeriger Lösung wenig stabil. Wässerige U^{III}-Lösungen entwickeln Wasserstoff; Lösungen von Np^{III} und Pu^{III} sind zwar gegen Wasser stabil, oxydieren sich aber leicht unter dem Einfluß der Luft.

In der Oxydationsstufe IV besteht eine enge chemische Verwandtschaft zu Ce^{IV} und Zr. Thorium ist nur in dieser Oxydationsstufe stabil. U^{IV} und Np^{IV} sind in wässeriger Lösung stabil, oxydieren sich aber an der Luft langsam zu U^{VI} (UO_2^{2+}) bzw. Np^{V} (NpO_2^{+}). Pu^{IV} ist nur in konzentrierter Säure stabil; bei geringer Säurekonzentration disproportioniert es zu Pu^{III} und Pu^{VI}. Am^{IV} und Cm^{IV} sind in Lösung nur als Fluorokomplexe bekannt, Bk^{IV} ist stabil (ähnlich wie Ce^{IV}), kann aber zu Bk^{III} reduziert werden. Alle Actiniden der Oxydationsstufe IV bilden schwer lösliche Jodate und Arsenate. Die Basizität nimmt in folgender Reihenfolge ab:

$$Th^{4+} > U^{4+} \approx Pu^{4+} > Ce^{4+} > Zr^{4+}.$$

In der Oxydationsstufe IV neigen die Actiniden stark zur Hydrolyse und zur Komplexbildung. Beim Vergleich mit anderen Oxydationsstufen ergibt sich folgende Abstufung:

$$M^{4+} > MO_2^{2+} > M^{3+} > MO_2^{+}.$$

Die Neigung zur Komplexbildung der Oxydationsstufe IV mit verschiedenen Anionen läßt sich durch folgende Reihe angeben:

$$F^- > NO_3^- > Cl^- > ClO_4^-$$

bzw.

$$CO_3^{2-} > C_2O_4^{2-} > SO_4^{2-}.$$

In der Oxydationsstufe V unterscheidet sich in wässeriger Lösung das Protactinium sehr stark vom Uran und den folgenden Elementen Neptunium, Plutonium und Americium. Pa^{V} neigt sehr stark zur Hydrolyse, die nur durch Verwendung von konzentrierter Säure (z. B. 8 m HCl) oder Zusatz eines Komplexbildners (z. B. Fluoridionen) zurückgedrängt werden kann. Uran sowie die folgenden Elemente bilden im Gegensatz dazu die „yl"-Ionen $MO_2{}^+$ mit einer starken Bindung zwischen Metall und Sauerstoff. Dieser Unterschied beruht wahrscheinlich auf der verschiedenen Zahl der *f*-Elektronen bei Protactinium und Uran. In wässeriger Lösung sind im Gleichgewicht neben U^{IV} und U^{VI} auch stets kleine Mengen U^{V} vorhanden. Np^{V} ist als $NpO_2{}^+$ in wässeriger Lösung recht stabil, $PuO_2{}^+$ und $AmO_2{}^+$ disproportionieren sehr leicht.

Die höchste Oxydationsstufe, in der die Actiniden auftreten können, ist VI. Sie ist beim Uran besonders bevorzugt und tritt außerdem bei Neptunium, Plutonium und Americium auf. In wässeriger Lösung bilden diese Elemente in der Oxydationsstufe VI die „yl"-Ionen MO_2^{++}. Dies sind keine Hydrolyseprodukte; denn sie sind auch in starken Säuren stabil. Die Sauerstoffatome sind sehr fest gebunden; der geringe Abstand entspricht je einer Doppelbindung zwischen Metall und Sauerstoff. Zusätzlich zu den beiden Sauerstoffatomen können noch 4 oder 6 Liganden zugeordnet werden (vgl. Abb. (14–18)).

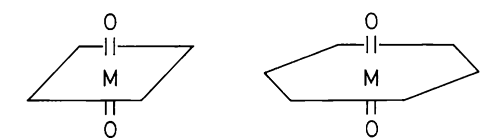


Abb. (14–18) $MO_2{}^{2+}$-Ionen umgeben von 4 bzw. 6 Liganden.

Die Metalle der Actiniden reagieren bei etwa 300 °C mit Wasserstoff, wobei sich metallartige Hydride der Zusammensetzung MH_2 bis MH_3 bilden. Die Bildung von Uranhydrid, die bei höherer Temperatur reversibel ist, wird gern zur Speicherung von Tritium benutzt.

Die Fluoride und Chloride der Actiniden sind in den Tabellen 14.7. und 14.8. aufgeführt. Bei den Halogeniden spiegelt sich die Wertigkeitsskala der Actiniden wieder. Auch die Oxide, die in Abb. (14–19) eingezeichnet sind, lassen die Wertigkeitsskala der Actiniden erkennen. Eine Besonderheit der Oxide ist die Bildung nicht stöchiometrischer Verbindungen, die sich durch größere Homogenitätsbereiche zu erkennen gibt. Die Zusammensetzung ist im Gleichgewicht abhängig

Tabelle 14.7.
Fluoride der Actiniden

Element	Oxydationsstufe III		Oxydationsstufe IV		Oxydationsstufe V		Oxydationsstufe VI	
Ac	AcF_3	weiß	—		—		—	
Th	—		ThF_4	weiß	—		—	
Pa	—		PaF_4	rotbraun	PaF_5	weiß	—	
U	UF_3	schwarz	UF_4	grün	UF_5	fast weiß	UF_6	weiß
Np	NpF_3	schwarz	NpF_4	grün	—		NpF_6	orange
Pu	PuF_3	purpur	PuF_4	braun	—	—	PuF_6	rotbraun
Am	AmF_3	rosa	AmF_4	gelbbraun	—		—	
Cm	CmF_3	weiß?	CmF_4		—		—	

Tabelle 14.8.
Chloride der Actiniden

Element	Oxydationsstufe III		Oxydationsstufe IV		Oxydationsstufe V		Oxydationsstufe VI	
Ac	$AcCl_3$	weiß	—		—		—	
Th	—		$ThCl_4$	weiß	—			
Pa	—		$PaCl_4$	gelbgrün	$PaCl_5$	grüngelb		
U	UCl_3	rot	UCl_4	grün	UCl_5	rotbraun	UCl_6	dunkelgrün
Np	$NpCl_3$	weiß	$NpCl_4$	rotbraun	—			
Pu	$PuCl_3$	grün	—		—			
Am	$AmCl_3$	rosa	—		—			
Cm	$CmCl_3$	gelblich						

vom Sauerstoffpartialdruck in der Gasphase. So verliert z. B. UO_3 beim Erhitzen an der Luft auf Temperaturen oberhalb 400 °C Sauerstoff und geht oberhalb 600 °C in U_3O_8 über. Beim Abkühlen nimmt das U_3O_8 unterhalb 500 °C langsam wieder Sauerstoff auf.

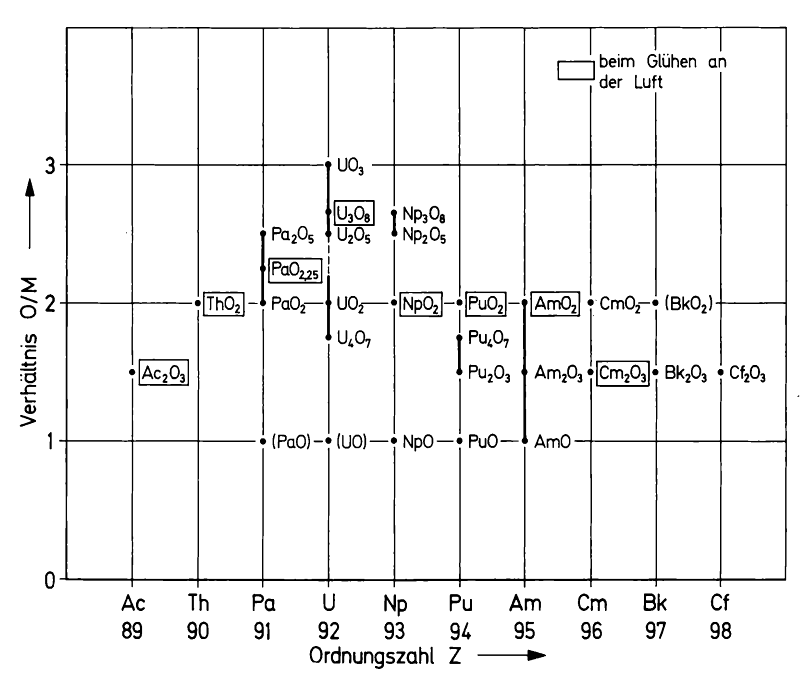


Abb. (14–19) Oxide der Actiniden.

Die Komplexbildung der Actiniden mit organischen oder anorganischen Liganden spielt für die Trennung der Elemente durch Extraktion oder in Ionenaustauschern eine wichtige Rolle. Für die analytische oder präparative Trennung im Laboratorium werden vorzugsweise Ionenaustauschverfahren benutzt. In Abb. (13–7) ist das Ergebnis der Trennung der Actiniden und der Lanthaniden an einem Harzaustauscher mit stark sauren funktionellen Gruppen (Dowex–50) unter Verwendung einer α-Oxysäure als Komplexbildner und Elutionsmittel aufgezeichnet. Die Reihenfolge der Elution wird durch die Komplexbildungskonstanten bestimmt. Für die Trennung der Elemente Thorium, Uran und Plutonium im großen Maßstab werden in der Technik Extraktionsverfahren verwendet (vgl. Tab. 11.14. sowie die Abbn. (11–15) und (11–16)).

Literatur zu Kapitel 14

1. O. Hahn: Künstliche Neue Elemente. Verlag Chemie, Weinheim/Bergstraße 1948.
2. G. T. Seaborg: The Transuranium Elements. Yale University Press, New Haven 1958.
3. G. T. Seaborg: Man-Made Transuranium Elements. Prentice-Hall, Englewood Cliffs, New Jersey, 1963.
4. G. T. Seaborg, J. J. Katz: The Actinide Elements. In: National Nuclear Energy Series Div. IV, Bd. 14 A. McGraw-Hill Book Comp., New York 1954.
5. E. K. Hyde, I. Perlman, G. T. Seaborg: The Nuclear Properties of the Heavy Elements, Bd. I und II. Prentice-Hall, Englewood Cliffs, New Jersey, 1964.
6. V. E. Viola, G. T. Seaborg: Nuclear Systematics of the Heavy Elements I, II. J. inorg. nuclear Chem. **28** (1966) 697, 741.
7. E. Anders: Technetium and Astatine Chemistry. Annu. Rev. nuclear Sci. **9** (1959) 203.
8. K. W. Bagnall: Chemistry of the Rare Radioelements (Polonium-Actinium). Butterworth, London 1957.
9. M. Haissinsky, J. P. Adloff: Radiochemical Survey of the Elements. Elsevier Publ. Comp., Amsterdam 1965.
10. C. Keller: Der Aufbau von Transuran-Elementen. Atompraxis **12**/1 (1966) 13.
11. B. B. Cunningham: Chemistry of the Actinide Elements. Annu. Rev. nuclear Sci. **14** (1964) 323.
12. R. A. Penneman, T. K. Keenan: The Radiochemistry of Americium and Curium. Aus: Nuclear Science Series NAS–NS 3006. Hrsg.:W. W. Meinke, Subcommittee on Radiochemistry, National Academy of Sciences, National Research Council 1960.
13. E. Anders: The Radiochemistry of Technetium, ibid. NAS – NS 3021.
14. G. H. Higgins: The Radiochemistry of the Transcurium Elements, ibid. NAS – NS 3031.
15. N. Jackson: The Radiochemistry of Neptunium and Plutonium, ibid. NAS – NS 3058.
16. P. C. Stevenson, W. E. Nervik: The Radiochemistry of Scandium, Yttrium, the Rare Earths and Actinium. ibid. NAS–NS 3020.

Übungen zu Kapitel 14

1. Welche Möglichkeiten bestehen zur Gewinnung des Elements Technetium?

2. Man diskutiere verschiedene Kernreaktionen zur Gewinnung von Pu–238.

3. Wie groß ist die Ausbeute an Pu–238, wenn 1 g Np–237 1 Jahr in einem Kernreaktor bei einer Flußdichte an thermischen Neutronen $\Phi = 10^{15}\,\mathrm{cm}^{-2}\,\mathrm{s}^{-1}$ bestrahlt wird?

$\sigma_{n,\gamma}$ (Np–237) = 170 b;
$\sigma_{n,f}$ (Np–237) = 0,018 b;
$\sigma_{n,f}$ (Np–238) = 1600 b;
$\sigma_{n,\gamma}$ (Pu–238) = 500 b;
$\sigma_{n,f}$ (Pu–238) = 16,8 b;

4. Welche Möglichkeiten bestehen zur Gewinnung von Pu–244 und Cm–244?

5. Welche Geschosse müssen verwendet werden, wenn das Element 106 (a) aus Plutoniumisotopen, (b) aus Curiumisotopen hergestellt werden soll? Man formuliere derartige Kernreaktionen. Auf welche Mindestenergie müssen die Ionen, die diese Kernreaktionen auslösen sollen, beschleunigt werden?

6. Man diskutiere die Möglichkeiten zur Gewinnung des Elements 105. Welchem anderen Element wird dieses voraussichtlich ähnlich sein?

15. Anwendungen

15.1. Allgemeine Gesichtspunkte

Die Möglichkeiten der Anwendung kernchemischer bzw. kernphysikalischer Arbeitsmethoden sind sehr vielseitig. Nach SEABORG besitzt die Anwendung der Radioaktivität für die Menschheit eine ebenso große Bedeutung wie die Nutzung der Kernenergie, die bei der Kernspaltung frei wird. Da es sich um eine Arbeitstechnik handelt, die auf der Verwendung von Radionukliden basiert, spricht man auch von Radionuklidtechnik oder „Isotopen"-Technik. Die große Bedeutung, die der Radionuklidtechnik heute in allen Gebieten der Naturwissenschaften und der Technik zukommt, beruht auf den beiden folgenden Merkmalen:

a) hohe Nachweisempfindlichkeit der radioaktiven Strahlung,
b) Möglichkeit der Markierung.

Die Nachweisempfindlichkeit für radioaktive Nuklide ist grundsätzlich größer als die jeder anderen analytischen Methode. Im Prinzip kann man ein einzelnes radioaktives Atom erkennen, wenn man gerade in dem Augenblick mißt, in dem dieses Atom zerfällt. In der Praxis muß allerdings im allgemeinen eine größere Anzahl von Atomen vorhanden sein, damit der Nachweis des betreffenden Radionuklids möglich ist. Wichtig für die Nachweisempfindlichkeit ist die Halbwertzeit des Radionuklids. Nach Gl. (5.14) sind Aktivität und Halbwertzeit durch folgende Beziehung miteinander verknüpft:

$$A = -\frac{\mathrm{d}N}{\mathrm{d}t} = \lambda N = \frac{\ln 2}{t_{1/2}} N. \qquad (15.1)$$

Unter der Annahme, daß 1 tps bequem nachweisbar ist, können die in Tab. 15.1. angegebenen Mengen an Radionukliden quantitativ be-

stimmt werden. Man erkennt deutlich, daß bei kleineren und mittleren Halbwertzeiten extrem hohe Nachweisempfindlichkeiten erreicht werden.

Tabelle 15.1.
Quantitativ nachweisbare Mengen von Radionukliden verschiedener Halbwertzeit. (Die angegebenen Mengen entsprechen einer Aktivität von 1 tps)

$t_{1/2}$	Zahl der Atome N	Mol
1 h	5200	$8{,}64 \cdot 10^{-21}$
1 d	125000	$2{,}08 \cdot 10^{-19}$
1 a	$4{,}55 \cdot 10^{7}$	$7{,}55 \cdot 10^{-17}$
10^{5} a	$4{,}55 \cdot 10^{12}$	$7{,}55 \cdot 10^{-12}$
10^{9} a	$4{,}55 \cdot 10^{16}$	$7{,}55 \cdot 10^{-8}$

Das zweite wichtige Merkmal kernchemischer Methoden ist die Möglichkeit der Markierung. Ein Element kann als solches oder in einer Verbindung durch ein radioaktives Isotop ersetzt werden. Dadurch ist es möglich, das Schicksal dieses Radionuklids bei einer chemischen Umsetzung oder bei einem Transportvorgang zu verfolgen. Diese Methode wird auch als Indikatormethode bezeichnet, weil das Radionuklid den Weg anzeigt, den das Element bzw. die Verbindung nimmt. Andere gebräuchliche Bezeichnungen sind „tracer"-Methode oder Methode der radiochemischen Indizierung. Die Atome werden gewissermaßen mit einem „roten Punkt" versehen, der es gestattet, sie jederzeit wiederzufinden. Die Indikatormethode gibt somit als „Mikromethode" einen verfeinerten Einblick in die atomaren Vorgänge; z. B. ist der Austausch von gleichartigen Atomen zwischen verschiedenen Verbindungen erkennbar (Isotopenaustausch) oder die wechselseitige Änderung der Oxydationsstufe zwischen gleichartigen Atomen (Elektronenaustausch).

Eine notwendige Voraussetzung für die Anwendung von markierten Atomen bzw. Verbindungen als Indikatoren ist, daß sich diese ebenso verhalten wie die inaktiven Atome oder Verbindungen, die man untersuchen will. Diese Voraussetzung ist im allgemeinen erfüllt, wenn man darauf achtet, daß die markierte Verbindung und die zu untersuchende Verbindung chemisch identisch sind. Sofern die relativen

Massenunterschiede groß sind, treten allerdings merkliche Isotopieeffekte auf, beispielsweise bei der Verwendung von Tritium zur Markierung von Wasserstoff (vgl. Kapitel 3).

Die hohe Nachweisempfindlichkeit führt zu den interessanten Anwendungen in der Analyse, die Möglichkeit der Markierung zu vielseitigen Anwendungen in der Kinetik; dabei wird unter dem Begriff Kinetik zusammengefaßt: Die Aufklärung von Reaktionsmechanismen, die Messung von Geschwindigkeitskonstanten, Diffusionskoeffizienten und Transportvorgängen in homogenen und heterogenen Systemen. Im Rahmen dieser Darstellung kann nur ein Überblick über die Anwendungen kernchemischer Methoden gegeben werden.

15.2. Analyse auf Grund natürlicher Radioaktivität

Die Aktivität der in der Natur vorkommenden Radionuklide kann als Maß für die Menge des betreffenden Elements dienen, so daß eine quantitative Bestimmung möglich ist. Wichtige Voraussetzungen für solche Bestimmungen sind:

a) Die Isotopenzusammensetzung muß konstant sein; wenn die Folgeprodukte ebenfalls radioaktiv sind, muß außerdem das radioaktive Gleichgewicht eingestellt sein oder eine quantitative Abtrennung der Folgeprodukte durchgeführt werden.
b) Radioaktive Verunreinigungen dürfen nicht zugegen sein. Gegebenenfalls kann ihre Aktivität durch Messung der γ- oder α-Spektren eliminiert werden.

Analytische Bestimmungen auf Grund der natürlichen Radioaktivität sind üblich für die Elemente Kalium, Uran, Radium und Thorium.

Kalium enthält zu 0,0118% das Radionuklid K–40, dessen Halbwertzeit $1{,}26 \cdot 10^9$ a beträgt. Die Isotopenzusammensetzung ist nahezu konstant. K–40 ist gut nachweisbar, da es verhältnismäßig energiereiche β^--, β^+- und γ-Strahlung aussendet. Die natürliche Aktivität von 1 kg Kalium beträgt nach Gl. (15.1)

$$A = \frac{\ln 2}{t_{1/2}} N = \frac{0{,}693 \cdot 1000 \cdot 6{,}02 \cdot 10^{23} \cdot 1{,}18 \cdot 10^{-4}}{39{,}1 \cdot 1{,}26 \cdot 10^9 \cdot 365 \cdot 24 \cdot 3600} = 3{,}2 \cdot 10^4 \,\text{tps}. \tag{15.2}$$

Das ist ungefähr 1 μCi (3,7 · 10^4 tps). Geht man davon aus, daß bei geeigneter Versuchsanordnung eine Aktivität von 0,1 tps noch bestimmt werden kann, so folgt, daß 3 mg Kalium erfaßbar sind. Für die praktische Bestimmung des Kaliumgehaltes in Kaliumsalzen dient die in Abb. (15–1) skizzierte Versuchsanordnung. Als Detektor wird ein Spezialzählrohr mit großem Zählvolumen verwendet. Das Kalium-

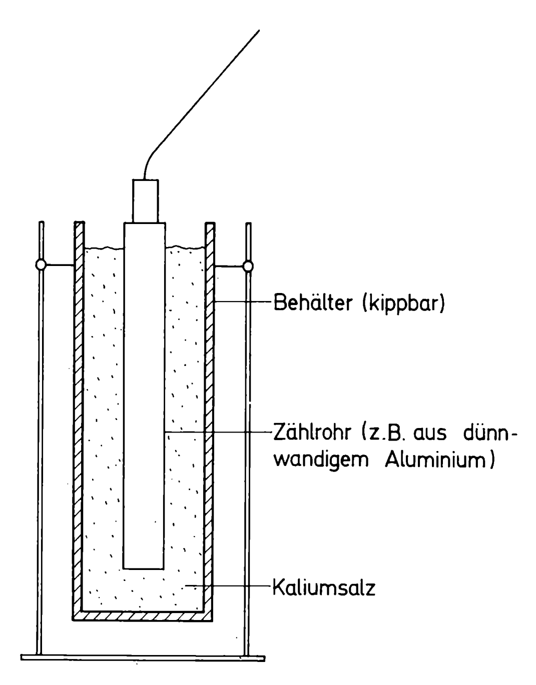


Abb. (15–1) Versuchsanordnung zur Bestimmung des Kaliumgehaltes in Kaliumsalzen.

salz wird in den Behälter eingeschüttet. Auf diese Weise kann auch der Kaliumgehalt von Kalisalzen sehr rasch unter Tage bestimmt werden. Andere radioaktive Salze stören die Bestimmung, z. B. größere Mengen an Rubidium.

Im natürlichen Uran sind alle Radionuklide der Uran-Familie zugegen, manchmal auch noch die Radionuklide der Thorium-Familie. Die direkte Bestimmung des Urans in einem Mineral ohne chemische Trennung ist schwierig, weil die Selbstabsorption der Strahlung in dem betreffenden Mineral stark von der Gesteinsart und dem Verteilungszustand abhängig ist. Nach dem Aufschluß wird meist das Tochternuklid Th–234 abgetrennt und gemessen. Th–234 kann nach Zusatz von Träger gefällt oder durch Extraktion (z. B. mit TTA = Thenoyl-

trifluoraceton) isoliert werden. Das radioaktive Gleichgewicht mit dem kurzlebigen Tochternuklid Pa–234m, das β-Strahlung hoher Energie aussendet und deshalb leicht meßbar ist, stellt sich rasch ein. Voraussetzung für die Bestimmung des Urans durch Messung des Tochternuklids Th–234 ist, daß das radioaktive Gleichgewicht zwischen U–238 und Th–234 eingestellt ist; d. h. etwa 10 · 24 d ≈ 8 Monate darf keine chemische Behandlung erfolgt sein.

Ra–226 kann mit sehr großer Empfindlichkeit auf Grund der Aktivität des im Gleichgewicht vorhandenen Rn–222 bestimmt werden. Nach Einstellung des Gleichgewichts (10 · 3,8 d ≈ 1,5 Monate) wird das Radon in eine Ionisationskammer überführt und gemessen. Auf diese Weise kann der sehr niedrige Radiumgehalt in den Knochen des Menschen ermittelt werden (Größenordnung 10^{-12} g).

Im Falle des Thoriums erfolgt die Einstellung des radioaktiven Gleichgewichts mit den Folgeprodukten sehr langsam (vgl. Tab. 5.1.)

$$^{232}\mathrm{Th} \xrightarrow[1{,}4 \cdot 10^{10}\,\mathrm{a}]{\alpha} {}^{228}\mathrm{Ra} \xrightarrow[6{,}7\,\mathrm{a}]{\beta^-} {}^{228}\mathrm{Ac} \xrightarrow[6{,}13\,\mathrm{h}]{\beta^-} {}^{228}\mathrm{Th}. \qquad (15.3)$$

Als direkte Bestimmungsmethode kommt die Messung der α-Strahlung in Frage; am vorteilhaftesten ist die Messung des Po–212. Die Empfindlichkeit beträgt etwa 10^{-6} g Thorium/g Gestein. Die Ergebnisse hängen allerdings sehr stark vom Verteilungszustand des Thoriums ab. Andere Verfahren beruhen auf der Abtrennung des Ra–228 oder des Rn–220. Im letzteren Fall muß darauf geachtet werden, daß das gesamte Rn–220 erfaßt wird, das im radioaktiven Gleichgewicht vorhanden ist; die Empfindlichkeit beträgt etwa 10^{-3} g/g Gestein. Die Bestimmung des Thoriums auf Grund der natürlichen Radioaktivität wird durch radioaktive Verunreinigungen — z. B. Uranverbindungen — gestört.

15.3. Verdünnungsanalyse

Die Verdünnungsanalyse wird insbesondere dann angewendet, wenn eine quantitative Abtrennung des gesuchten Elements bzw. der gesuchten Verbindung nicht möglich ist. Die quantitative Trennung wird umgangen; an ihre Stelle tritt die Abtrennung einer beliebigen Menge Substanz in reiner Form.

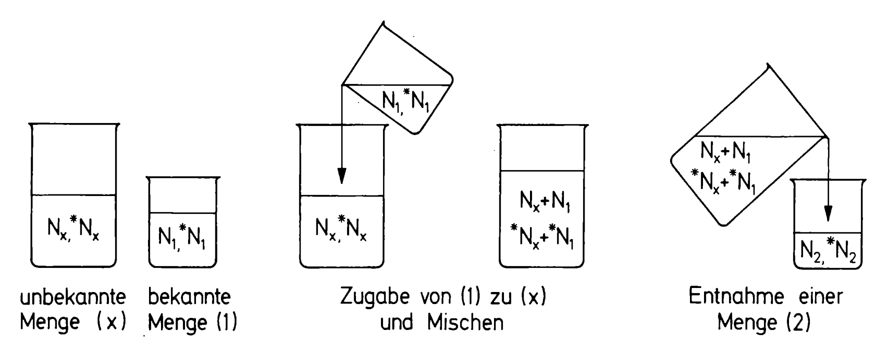


Abb. (15–2) Prinzip der Verdünnungsanalyse.

Das Prinzip der Verdünnungsanalyse ist in Abb. (15–2) erläutert. Gegeben sei eine Substanz, die eine unbekannte Zahl von Molekülen N_x einer bestimmten Verbindung enthält. Diese Substanz kann im allgemeinen Fall auch eine unbekannte Zahl von markierten Molekülen $^*N_x$ der gleichen Verbindung enthalten. Nun wird eine bekannte Zahl von Molekülen N_1 dieser Verbindung zugegeben, die außerdem eine bekannte Zahl von markierten Molekülen $^*N_1$ der gleichen Verbindung enthält. Die zugesetzte Verbindung muß nicht identisch sein mit der Verbindung, deren Menge bestimmt werden soll. Wichtig ist aber, daß sich die zugesetzte Verbindung ebenso verhält und daß der chemische Zustand genau definiert ist. Anschließend wird gemischt, so daß eine Gleichverteilung eintritt. Dann wird eine Probe entnommen; darin werden durch Wägung oder Analyse N_2 Moleküle der gesuchten Verbindung gefunden und durch Aktivitätsmessung $^*N_2$ markierte Moleküle. Aus der Gleichverteilung folgt:

$$\frac{^*N_2}{N_2} = \frac{^*N_x + {}^*N_1}{N_x + N_1}. \tag{15.4}$$

Durch Einführung der spezifischen Aktivitäten

$$A_{S_i} = \frac{A_i}{m_i} = \frac{\lambda}{M/N_L} \; \frac{^*N_i}{N_i + {}^*N_i} \tag{15.5}$$

(M = Atom- bzw. Molekulargewicht der markierten Komponente; N_L = Loschmidtsche Zahl) und Umformung erhält man unter der Voraussetzung, daß $^*N_i \ll N_i$ ist,

$$N_x = N_1 \frac{A_{S_1} - A_{S_2}}{A_{S_2} - A_{S_x}}. \tag{15.6}$$

In den meisten Fällen ist die zu untersuchende Substanz inaktiv, $A_{S_x} = 0$. Dann gilt

$$N_x = N_1 \frac{A_{S_1} - A_{S_2}}{A_{S_2}}; \tag{15.7}$$

d. h., die Änderung der spezifischen Aktivität ist ein Maß für N_x.

Eine häufige Anwendung der Verdünnungsanalyse ist die Bestimmung einer inaktiven Verbindung durch Zusatz einer aktiven Verbindung. Ein einfaches und anschauliches Beispiel ist die Bestimmung der Blutmenge in einem Lebewesen. Es liegt auf der Hand, daß eine direkte quantitative Bestimmung in diesem Falle nicht möglich ist. Das Verfahren der Verdünnungsanalyse besteht darin, daß ein kleines abgemessenes Volumen einer radioaktiven Lösung bekannter Aktivität in die Blutbahn injiziert und nach der Durchmischung, die der Blutkreislauf besorgt, ein kleines abgemessenes Volumen entnommen und gemessen wird. Es gilt dann in Anlehnung an Gl. (15.7)

$$V_x = V_1 \frac{A_{S_1} - A_{S_2}}{A_{S_2}}. \tag{15.8}$$

Liegt eine unbekannte Menge einer chemischen Verbindung vor, deren quantitative Abtrennung schwierig ist, so setzt man die Menge m_1 dieser Verbindung mit der spezifischen Aktivität A_{S_1} zu und trennt nach der Durchmischung eine kleine Menge der Verbindung in reiner Form ab. Durch Wägen und Messung der Aktivität erhält man die spezifische Aktivität A_{S_2} und aus Gl. (15.7) die gesuchte Menge m_x der Verbindung

$$m_x = m_1 \frac{A_{S_1} - A_{S_2}}{A_{S_2}}. \tag{15.9}$$

Eine weitere Anwendung der Verdünnungsanalyse, die in der Kernchemie eine wichtige Bedeutung besitzt, ist die Bestimmung eines Radionuklids durch Verdünnung mit einer inaktiven Verbindung. Die quantitative Bestimmung von kleinen Mengen eines Radionuklids ist

oft sehr schwierig, z. B. wenn das Radionuklid in trägerfreier Form vorliegt und die Trennoperationen keine quantitative Ausbeute liefern. Dann verzichtet man auf die quantitative Abtrennung und wendet das Prinzip der Verdünnungsanalyse an: Eine bestimmte Menge m_1 eines inaktiven isotopen Trägers wird zugesetzt. Nach Beendigung der Trennoperation wird die Menge m_2 des Trägers bestimmt, die noch vorhanden ist. Das Verhältnis der gefundenen Menge zur gegebenen Menge gibt die Ausbeute bei der Trennoperation an. Außerdem wird die Aktivität A_2 des Radionuklids gemessen. Die gesuchte Aktivität beträgt dann

$$A_x = A_2 \frac{m_1}{m_2}. \qquad (15.10)$$

Diese Gleichung folgt unmittelbar aus Gl. (15.4), wenn man N_x und $*N_1$ gleich Null setzt, für $*N_x/*N_2$ das Verhältnis der Aktivität und für N_1/N_2 das Mengenverhältnis einsetzt.

15.4. Aktivierungsanalyse

Die Aktivierungsanalyse beruht auf der Erzeugung von Radionukliden durch Kernreaktionen. Für die durch Aktivierung hervorgerufene Aktivität gilt Gl. (8.77);

$$A_S = \sigma \Phi \frac{N_L}{M} H\left(1 - \left(\frac{1}{2}\right)^{t/t_{1/2}}\right) \left[\frac{\text{tps}}{\text{g}}\right]; \qquad (15.11)$$

σ ist der Wirkungsquerschnitt in cm^2, Φ der Fluß an Geschoßteilchen in $cm^{-2}\,s^{-1}$, N_L die Loschmidtsche Zahl, M das Atom- bzw. Molekulargewicht des Elements bzw. der Verbindung, das bestimmt werden soll, und H die Häufigkeit des Nuklids, in dem die Kernreaktion abläuft. Durch Einführung der Einheit $1\,b = 10^{-24}\,cm^2$ für den Wirkungsquerschnitt, des Faktors $f = \Phi \cdot 10^{-11}\,cm^{-2}\,s^{-1}$ für den Neutronenfluß und der Einheit 1 Ci für die Aktivität folgt

$$A_S = 1{,}63 \cdot \sigma \cdot f \cdot \frac{H}{M}\left(1 - \left(\frac{1}{2}\right)^{t/t_{1/2}}\right) \left[\frac{\text{Ci}}{\text{g}}\right]. \qquad (15.12)$$

Aus Gl. (15.11) bzw. (15.12) erkennt man sofort, daß die Nachweisbarkeit eines Elements von folgenden Faktoren abhängig ist:

a) Wirkungsquerschnitt für die Kernreaktion σ,
b) Fluß der Geschoßteilchen Φ,
c) Verhältnis von Bestrahlungszeit zu Halbwertzeit, $t/t_{1/2}$.

Am häufigsten werden Neutronen für die Aktivierung benutzt, weil diese in Kernreaktoren in verhältnismäßig hoher Flußdichte zur Verfügung stehen. Außerdem ist der Wirkungsquerschnitt der (n, γ)-Reaktionen, die durch thermische Neutronen bevorzugt ausgelöst werden, verhältnismäßig hoch. Geht man davon aus, daß eine Aktivität von 1 tps noch bestimmt werden kann, so erhält man die in Tabelle

Tabelle 15.2.
Nachweisempfindlichkeit von Elementen durch (n, γ)-Reaktion (Neutronenfluß $\Phi = 10^{12}$ cm^{-2} s^{-1}, Bestrahlungsdauer 1 Woche; als Grenze der Nachweisbarkeit ist 1 tps angenommen)

Element	in 1 g Substanz quantitativ bestimmbare Menge
In, Eu, Dy, Au	10^{-13} – 10^{-12} g
Mn, Co, Ag, Sm, Ho, In, Re, Ir	10^{-12} – 10^{-11} g
Na, Ga, As, Br, Pd, Sb, J, Cs, La, Pr, Tm, Yb, W, Os	10^{-11} – 10^{-10} g
P, Cl, K, Sc, Cr, Cu, Zn, Ge, Se, Rb, Y, Ru, Cd, Ba, Nd, Gd, Tb, Er, Ta, Pt, Hg	10^{-10} – 10^{-9} g
Ni, Sr, Mo, Sn, Te, Ce, Hf, Tl	10^{-9} – 10^{-8} g
S, Zr, Bi, Ca, Fe	10^{-8} – 10^{-7} g

15.2. eingetragenen Werte für die Nachweisempfindlichkeit von verschiedenen Elementen durch (n, γ)-Reaktionen bei einem Neutronenfluß $\Phi = 10^{12}$ cm^{-2} s^{-1} und einer Bestrahlungszeit von einer Woche. Die an der Spitze dieser Tabelle stehenden Elemente besitzen einen hohen Wirkungsquerschnitt für die Erzeugung von Radionukliden durch (n, γ)-Reaktionen und können deshalb mit außerordentlich großer Empfindlichkeit nachgewiesen werden. Diese Nachweisempfindlichkeiten werden durch andere analytische Methoden im allgemeinen nicht erreicht.

Auf Grund der hohen Empfindlichkeit ist die Aktivierungsanalyse eine Methode zur Bestimmung von Nebenbestandteilen, die in niedrigen Konzentrationen vorliegen. Sie eignet sich insbesondere für die Bestimmung von Spurenelementen, z. B. in hochreinen Stoffen, und

besitzt deshalb für die Halbleitertechnik als Analysenmethode große Bedeutung.

Selbstverständlich können auch andere Kernreaktionen, z. B. (n, 2n)- oder (γ, n)-Reaktionen, für die Aktivierungsanalyse herangezogen werden. Der Wirkungsquerschnitt ist jedoch für diese Reaktionen im allgemeinen erheblich kleiner. Auch der Fluß an Geschoßteilchen ist meist geringer. Trotzdem sind diese Kernreaktionen in vielen Fällen für die Aktivierungsanalyse von praktischem Interesse, sei es, daß das betreffende Element durch (n, γ)-Reaktionen nicht aktiviert wird, oder daß dadurch die Aktivierung des Hauptbestandteils vermieden werden kann.

Folgende Elemente können durch (n, γ)-Reaktionen nicht in nennenswertem Umfange aktiviert werden: Wasserstoff, Beryllium, Kohlenstoff, Stickstoff und Sauerstoff; verhältnismäßig niedrige Sättigungsaktivitäten werden erhalten bei Fluor, Magnesium, Aluminium, Silicium und Titan. Alle genannten Elemente sind in Tab. 15.2. nicht aufgeführt. In einigen Fällen können andere Kernreaktionen zum Nachweis dieser Elemente herangezogen werden. Ein interessantes Beispiel ist die Bestimmung von Sauerstoff durch Aktivierungsanalyse mit Hilfe folgender Kernreaktionen

$$^{16}\mathrm{O}\,(\mathrm{n, p})\,^{16}\mathrm{N} \tag{15.13}$$

$$^{16}\mathrm{O}\,(\mathrm{t, n})\,^{18}\mathrm{F}\ [\mathrm{t\ aus}\ ^{6}\mathrm{Li}\,(\mathrm{n}, \alpha)\,\mathrm{t}]. \tag{15.14}$$

Die Nachweisempfindlichkeit auf Grund der Reaktion (15.13) ist infolge des niedrigen Wirkungsquerschnittes verhältnismäßig klein (Größenordnung 100 ppm). Der Nachweis mit Hilfe der Reaktion (15.14) wird durch die Reichweite der Tritiumatome eingeschränkt, die aus dem beigefügten Lithium entstehen; die Methode liefert gute Ergebnisse für die Sauerstoffbestimmung auf einer Oberfläche. Eine Stickstoffbestimmung ist auf Grund der folgenden Kernreaktion möglich:

$$^{14}\mathrm{N}\,(\gamma, \mathrm{n})\,^{13}\mathrm{N}\ \ (\sigma \approx 1\,\mathrm{mb}). \tag{15.15}$$

Als Empfindlichkeit dieser Bestimmung wird 1 ppm angegeben. Auch die Bestimmung des Siliciums kann mit Hilfe einer (γ, n)-Reaktion erfolgen:

$$^{28}\mathrm{Si}\,(\gamma, \mathrm{n})\,^{27}\mathrm{Si}\ \ (\sigma \approx 21\,\mathrm{mb}). \tag{15.16}$$

Die Aktivierungsanalyse wird im allgemeinen als Vergleichsmethode angewendet; d. h., die zu bestimmende Probe und eine Probe mit bekanntem Gehalt werden gemeinsam unter den gleichen Bedingungen bestrahlt, in der gleichen Weise verarbeitet und gemessen. In vielen Fällen kann die chemische Aufarbeitung entfallen, und zwar dann, wenn keine anderen Radionuklide vorhanden sind oder die Aktivität des gesuchten Radionuklids unabhängig von den radioaktiven Verunreinigungen gemessen werden kann — z. B. in einem γ- oder α-Spektrometer. Sind unbekannte radioaktive Verunreinigungen zugegen oder ist die Auflösung des Spektrums im Spektrometer nicht möglich, so ist eine chemische Trennung erforderlich. Auch in diesem Falle kann die quantitative Trennung durch Anwendung der Verdünnungsanalyse umgangen werden. Nach der Bestrahlung wird eine bekannte Menge eines isotopen Trägers zugesetzt; dann wird die chemische Trennung ausgeführt und die Ausbeute dieser Trennung durch Bestimmung der noch vorhandenen Menge des Trägers ermittelt. Die Auswertung erfolgt nach Gl. (15.10).

Im Gegensatz zu anderen Verfahren der Spurenanalyse stören bei der Aktivierungsanalyse Verunreinigungen in den Reagenzien, die nach der Bestrahlung für die chemische Trennung verwendet werden, nicht.

Ein wichtiger Gesichtspunkt für die Anwendung der Aktivierungsanalyse zur Lösung einer bestimmten Aufgabe ist die Frage, in welchem Umfang der Hauptbestandteil aktiviert wird. In diesem Zusammenhang ist das Verhältnis der Wirkungsquerschnitte des gesuchten Nebenbestandteils und des Hauptbestandteils, σ_x/σ_H, von Bedeutung. Je größer dieses Verhältnis, um so günstiger ist die Anwendung der Aktivierungsanalyse in dem betreffenden Fall. Besonders vorteilhaft ist die Aktivierungsanalyse dann, wenn der Wirkungsquerschnitt des Hauptbestandteils niedrig ist und aus dem Hauptbestandteil ausschließlich kurzlebige oder aber sehr langlebige Radionuklide entstehen. Diese Bedingungen sind beispielsweise für die Bestrahlung mit thermischen Neutronen bei den bereits oben erwähnten Elementen erfüllt (Wasserstoff, Beryllium, Kohlenstoff, Stickstoff, Sauerstoff, Fluor, Magnesium, Aluminium, Silicium, Titan). Verunreinigungen in diesen Elementen oder in Verbindungen, die diese Elemente enthalten, lassen sich demnach verhältnismäßig einfach durch Aktivierung mit thermischen Neutronen erfassen. Praktische Beispiele sind die Bestimmung von Kupfer oder Mangan in Aluminium, die Bestimmung von Seltenen Erden — die im allgemeinen hohe Wirkungsquerschnitte

für (n, γ)-Reaktionen besitzen (vgl. Tab. 15.2.) — in den oben erwähnten Elementen Beryllium, Kohlenstoff, Magnesium, Aluminium, Silicium, die Aktivierungsanalyse von hochreinem Silicium oder von Trinkwasser. Wenn der Hauptbestandteil in merklichem Umfang aktiviert wird, sind die bestrahlten Präparate verhältnismäßig stark radioaktiv. Die Handhabung und Aufarbeitung wird dadurch erheblich erschwert. Außerdem ist eine saubere Abtrennung des Hauptbestandteils meist unumgänglich, bevor die Aktivität des gesuchten Nebenbestandteils gemessen werden kann. Tritt bei der Aktivierung mit thermischen Neutronen eine unerwünscht hohe Aktivierung des Hauptbestandteils auf, so ergeben sich folgende Möglichkeiten:

a) Abschirmung der thermischen Neutronen, so daß die Aktivierung der Probe ausschließlich durch Neutronen höherer Energie erfolgt. Zu diesem Zweck kann die Probe beispielsweise in Cadmiumblech eingewickelt werden. Wenn der Nebenbestandteil im Resonanzbereich einen hohen Einfangquerschnitt besitzt, der Hauptbestandteil aber nicht, wird das Verhältnis σ_x/σ_H erheblich erhöht.

b) Auswahl anderer Bestrahlungsmöglichkeiten. Beispiele sind: Bestrahlung mit den 14 MeV Neutronen eines Neutronengenerators,

Tabelle 15.3.
Beispiele für die Aktivierungsanalyse in Beschleunigern

Bestimmung von	Hauptbestandteil der Probe	Kernreaktion	Energie der Geschoß-teilchen	Empfindlichkeit
Al	Si	$^{27}Al(n,\alpha)^{24}Na$	14 MeV	0,1 ppm
Ti	Al	$^{48}Ti(n,p)^{48}Sc$	14 MeV	130 ppm
Nb	Si (Silikate)	$^{93}Nb(\alpha,n)^{96}Tc$	30 MeV	keine Angaben
B	Si	$^{10}B(d,n)^{11}C$	7 MeV	$\approx$ 0,05 ppm
Si	Al	$^{30}Si(d,p)^{31}Si$	4 MeV	$3{,}7 \cdot 10^3$ ppm
Ga	Fe	$^{69}Ga(d,p)^{70}Ga$	6,4 MeV	6 ppm
F	Si (Glas)	$^{19}F(p,\alpha)^{16}O$	1,4 MeV	keine Angaben
C	Fe (Stahl)	$^{12}C(p,\gamma)^{13}N$	0,80 MeV	400 ppm
C	Be	$^{12}C(\gamma,n)^{11}C$	22,5 MeV	$\approx$ 160 ppm

Werte aus:
R. C. Koch: Activation Analysis Handbook. Academic Press, New York 1960.

Bestrahlung mit Protonen, Deuteronen oder γ-Quanten eines Zyklotrons oder Linearbeschleunigers. Wenn solche Geräte zur Verfügung stehen, sind viele Variationen möglich.

Die Auswahl optimaler Bedingungen hängt in entscheidender Weise von der jeweiligen Aufgabenstellung ab. In Tab. 15.3. sind einige Beispiele angegeben.

15.5. Indikatormethoden in der Chemie

15.5.1. Gleichgewichte

Die außerordentlich hohe Empfindlichkeit der kernchemischen Methoden erlaubt die Messung sehr kleiner Konzentrationen, wie sie bei Löslichkeitsgleichgewichten schwerlöslicher Stoffe oder bei Verteilungsgleichgewichten auftreten. Als Beispiel sind in Abb. (15–3) die

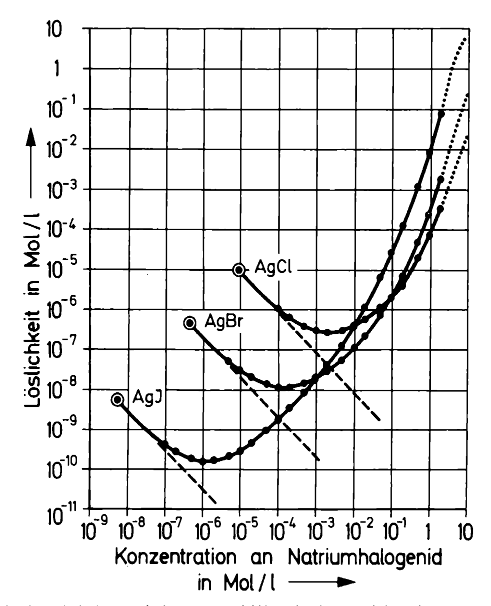


Abb. (15–3) Löslichkeitsgleichgewichte von Silberhalogeniden in Wasser und Natriumhalogenidlösungen (◉: Löslichkeit in Wasser). Nach K. H. Lieser: Z. anorg. allg. Chem. **229** (1957) 97.

Löslichkeitsgleichgewichte der Silberhalogenide in Wasser und in Natriumhalogenidlösungen verschiedener Konzentrationen aufgetragen. Der Abfall der Löslichkeit beruht auf der Löslichkeitsverminderung

infolge des Zusatzes gleichartiger Ionen (Konstanz des Löslichkeitsproduktes), der Anstieg der Löslichkeit auf den Komplexbildungsgleichgewichten. In ähnlicher Weise können auch Verteilungsgleichgewichte bestimmt werden. Dabei ist die Anwendung radioaktiver Nuklide als Indikatoren immer dann von Vorteil, wenn die Messung bei möglichst niedriger Konzentration erfolgen soll (ideales Verhalten) oder wenn die Verteilungskoeffizienten sehr groß sind (z. B. $K_d \geqslant 10^6$), so daß die Konzentration in einer der beiden Phasen außerordentlich gering ist und mit normalen Analysenmethoden nicht bestimmt werden kann. In Abb. (15–4) sind die Verteilungsgleichgewichte verschiede-

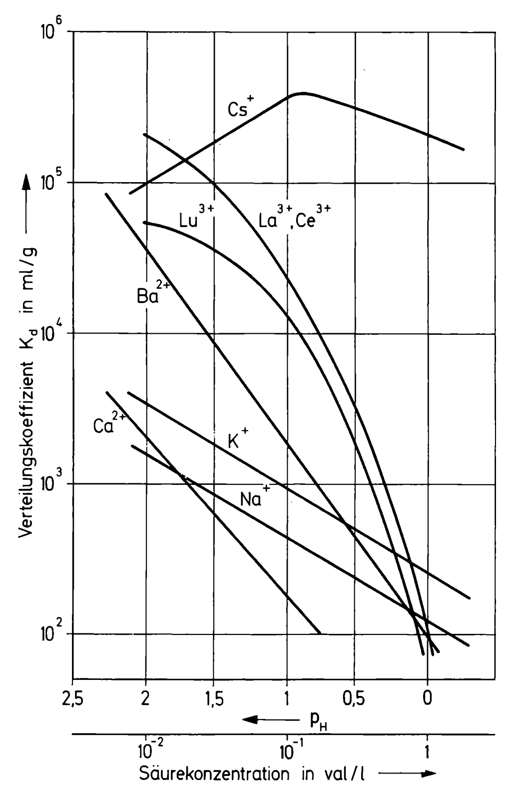


Abb. (15–4) Verteilungsgleichgewichte verschiedener Ionen an einem anorganischen Ionenaustauscher: Verteilungskoeffizient K_d als Funktion der Säurekonzentration. Nach J. Bastian u. K. H. Lieser: J. inorg. nucl. Chem. **29** (1967) 827.

ner Ionen an einem anorganischen Ionenaustauscher, die mit Hilfe radioaktiver Nuklide bestimmt wurden, aufgetragen.

15.5.2. Trennungsvorgänge

Zur Untersuchung von Trennungsvorgängen eignen sich radioaktive Nuklide wegen der hohen Nachweisempfindlichkeit ebenfalls sehr gut. Praktische Beispiele sind: Untersuchungen über die Vollständigkeit einer Fällungsreaktion, die Mitfällung in Abhängigkeit von den Fällungsbedingungen (vgl. Abschn. 13.4.) und die Verteilung der zu trennenden Komponenten in einer Trennsäule. Der Transport in einer Trennsäule kann mit Hilfe von γ-Strahlern als Indikatoren untersucht werden. Die Versuchsanordnung ist in Abb. (15–5) aufgezeichnet. Die

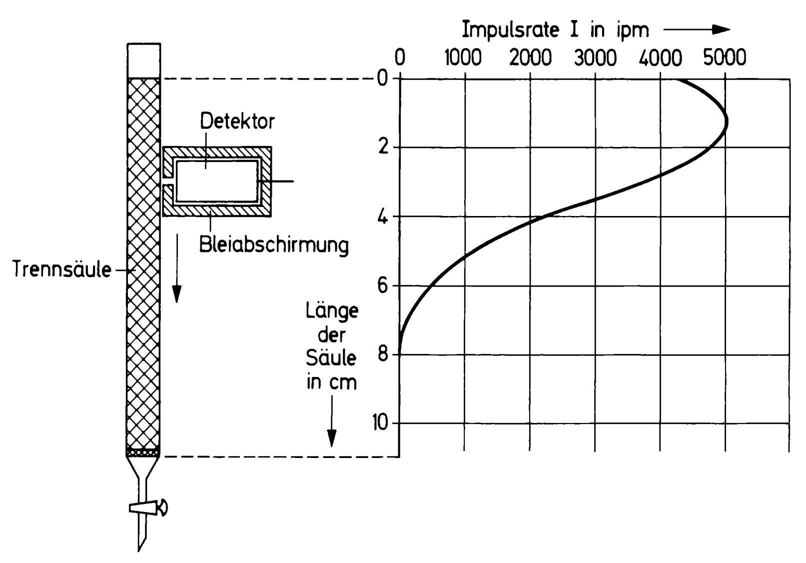


Abb. (15–5) Aufnahme der Aktivitätsverteilung in einer Trennsäule.

Trennsäule wird von außen mit einem Detektor abgetastet, der mit einer Bleiabschirmung versehen ist; die γ-Strahlung gelangt durch den Spalt dieser Abschirmung in den Detektor.

15.5.3. Homogene Reaktionskinetik

In der homogenen Reaktionskinetik ist die Anwendung der Indikatormethode ein unentbehrliches Hilfsmittel geworden zur Aufklärung von Reaktionsmechanismen und zur Bestimmung der kinetischen Daten einer Reaktion (Reaktionsgeschwindigkeit, Aktivierungsenergie und-entropie). Von den vielen Beispielen für die Aufklärung von Reaktionsmechanismen mit Hilfe der Markierung sei die Claisensche Allylumlagerung herausgegriffen:

$$C_6H_5\text{-}O\text{-}CH_2\text{-}CH{=}{}^{14}CH_2 \longrightarrow \text{(OH)}C_6H_4\text{-}{}^{14}CH_2\text{-}CH{=}CH_2 \tag{15.17}$$

Durch die Verwendung von C–14 und Untersuchung der Abbauprodukte wird der Nachweis erbracht, daß das endständige C–Atom die Bindung mit dem Benzolkern eingeht.

Die Messung von Isotopenaustauschreaktionen hat den besonderen Vorteil, daß keine chemische Änderung im System stattfindet; auch eine Reaktionswärme tritt nicht auf. Allgemein kann eine Isotopenaustauschreaktion folgendermaßen formuliert werden:

$$\underset{(1)}{AX} + \underset{(2)}{{}^*AY} \rightleftharpoons \underset{(1)}{{}^*AX} + \underset{(2)}{AY} \tag{15.18}$$

Diese Gleichung besagt, daß die Atome oder Atomgruppen A zwischen den beiden Molekülarten AX und AY ausgetauscht werden. Abgesehen von den Isotopieeffekten, ist die Reaktionsenthalpie $\Delta H \approx 0$. Für die Reaktionsentropie gilt dagegen $\Delta S \neq 0$. Damit ist $\Delta G \approx - T\Delta S$. Die Reaktion ist solange erkennbar, bis eine Gleichverteilung der markierten Atome bzw. Atomgruppen *A zwischen den beiden Molekülarten AX und AY vorliegt. Wenn eine Molekülart (oder beide) mehrere austauschfähige Atome enthalten, so muß man unterscheiden, ob diese Atome chemisch gleichwertig sind oder nicht. Zum Beispiel sind in dem System $AlCl_3/CCl_4$ die drei Chloratome im Aluminiumchlorid bzw. die vier Chloratome im Kohlenstofftetrachlorid untereinander gleichwertig; es liegt eine einfache Austauschreaktion vor (eine einzige Geschwindigkeitskonstante). Im System Chlorwasserstoff/1–Nitro–2,4–dichlorbenzol dagegen sind die austauschfähigen Chloratome nicht gleichwertig; die beiden Chloratome im 1–Nitro–2,4–dichlorbenzol tauschen mit verschiedenen Geschwindigkeiten aus. Wir sprechen deshalb von einer komplexen Austauschreaktion (Überlagerung mehrerer Geschwindigkeitskonstanten). Wenn mehrere verschiedene Molekülarten vorliegen, die austauschfähige Atome enthalten, so sind auch mehrere Austauschgleichgewichte zu berücksichtigen. Zwischen drei Molekülarten sind drei Austauschgleichgewichte möglich, zwischen n Molekülarten $\frac{n(n-1)}{2}$ Austauschgleichgewichte.

Für die Geschwindigkeit einer Isotopenaustauschreaktion nach Gl. (15.18) erhält man unter Berücksichtigung der Hin- und Rückreaktion die Beziehung

$$\frac{\mathrm{d}^*c_1}{\mathrm{d}t} = R(s_2 - s_1). \tag{15.19}$$

$^*c_1$ ist die Konzentration der markierten Isotope des austauschenden Elements in Form der Molekülart (1). s_1 und s_2 sind die Bruchteile der markierten Isotope in den Molekülarten (1) und (2): $s_1 = {}^*c_1/c_1$, $s_2 = {}^*c_2/c_2$; c_1 und c_2 sind die Konzentrationen des austauschenden Elements in Form der Molekülarten (1) und (2). R ist die Reaktionsgeschwindigkeit der betreffenden Reaktion, z. B.

$$\begin{aligned} R &= k_1 c_1 \quad &\text{(Reaktion 1. Ordnung)} \\ R &= k_2 c_1 c_2 \quad &\text{(Reaktion 2. Ordnung)} \end{aligned} \tag{15.20}$$

Gl. (15.19) besagt, daß die Reaktion solange verfolgt werden kann, bis die spezifische Aktivität in beiden Molekülarten gleich ist. Durch Integration von Gl. (15.19) erhält man die für die Auswertung von Isotopenaustauschreaktionen wichtige McKaysche Gleichung

$$\ln(1 - \lambda) = -R\frac{c_1 + c_2}{c_1 c_2}t. \tag{15.21}$$

In dieser Gleichung ist als charakteristische Größe für die Austauschreaktion der Austauschgrad λ eingeführt, der durch folgende Beziehung gegeben ist:

$$\begin{aligned} \lambda &= \frac{^*c_1 - {}^*c_1(\mathrm{o})}{^*c_1(\infty) - {}^*c_1(\mathrm{o})} = \frac{^*c_2 - {}^*c_2(\mathrm{o})}{^*c_2(\infty) - {}^*c_2(\mathrm{o})} = \\ &= \frac{s_1 - s_1(\mathrm{o})}{s_1(\infty) - s_1(\mathrm{o})} = \frac{s_2 - s_2(\mathrm{o})}{s_2(\infty) - s_2(\mathrm{o})}. \end{aligned} \tag{15.22}$$

Der Index (o) gilt für den Anfangszustand, der Index (∞) für den Gleichgewichtszustand. Die Auswertung der Versuchsergebnisse erfolgt nach Gl. (15.21) am zweckmäßigsten in der Weise, daß $\ln(1 - \lambda)$ als Funktion der Zeit aufgetragen wird, wie dies in Abb. (15–6) dargestellt ist. Die Halbwertzeit der Isotopenaustauschreaktion kann aus Abb. (15–6) entnommen werden; sie ist nach Gl. (15.21) gegeben

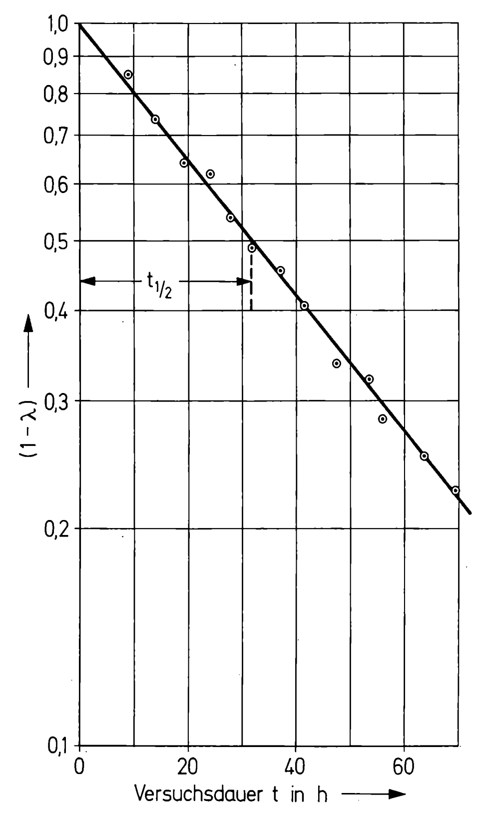


Abb. (15–6) Auswertung der Messung einer Isotopenaustauschreaktion.

durch

$$t_{1/2} = \frac{\ln 2}{R} \frac{c_1 c_2}{c_1 + c_2}. \tag{15.23}$$

Unter Berücksichtigung von Gl. (15.20) folgt für die Geschwindigkeitskonstanten

$$\begin{aligned} k_1 &= \frac{\ln 2}{t_{1/2}} \frac{c_2}{c_1 + c_2} \quad \text{(Reaktion 1. Ordnung)} \\ k_2 &= \frac{\ln 2}{t_{1/2}(c_1 + c_2)} \quad \text{(Reaktion 2. Ordnung)} \end{aligned} \tag{15.24}$$

Die Untersuchung von Isotopenaustauschreaktionen hat sowohl in der anorganischen Chemie als auch in der organischen Chemie große Bedeutung erlangt. In der organischen Chemie haben die Messungen

der Austauschreaktionen zwischen organischen Halogeniden und Halogenidionen wesentlich zu den Vorstellungen über den Ablauf von S_N1- und S_N2-Reaktionen beigetragen. Ein Beispiel ist die Austauschreaktion

$$\begin{matrix} R_1 \\ R_2 \\ R_3 \end{matrix} \!\!>\!\! C - X + {}^*X^- \rightleftharpoons \begin{matrix} R_1 \\ R_2 \\ R_3 \end{matrix} \!\!>\!\! C - {}^*X + X^- . \qquad (15.25)$$

Wenn die Reste R_1, R_2 und R_3 ungleich sind, ist C ein asymmetrisches Kohlenstoffatom. Die Geschwindigkeit der Bildung des optischen Antipoden ist in diesem Fall gleich der Isotopenaustauschgeschwindigkeit, wodurch der Mechanismus der S_N2-Reaktion bewiesen wird.

In der anorganischen Chemie sind durch das Studium der Austauschreaktionen an Komplexverbindungen wichtige neue Erkenntnisse gewonnen worden. So wurde festgestellt, daß manche Liganden rasch austauschen, andere Liganden sehr langsam. Zum Beispiel erfolgt der Ligandenaustausch im System $Fe(H_2O)_6/{}^*H_2O$ sehr rasch, im System $Cr(H_2O)_6/{}^*H_2O$ langsam. Im System $Al(C_2O_4)_3{}^{3-}/{}^*C_2O_4{}^{2-}$ ist der Austausch ebenfalls rasch, im System $Fe(C_2O_4)_3{}^{3-}/{}^*C_2O_4{}^{2-}$ dagegen langsam. Man unterscheidet dementsprechend substitutionslabile und substitutionsinerte Komplexverbindungen. Die Austauschgeschwindigkeit ist abhängig von der Zahl der *d*-Elektronen und von dem Ligandenfeld. Sie steht im allgemeinen nicht im Zusammenhang mit der thermodynamischen Stabilität der Komplexverbindungen und erlaubt Rückschlüsse auf die Bindungsverhältnisse.

Ein weiteres wichtiges Anwendungsgebiet ist die Untersuchung von Elektronenaustauschreaktionen. Unter Elektronenaustausch versteht man die wechselseitige Änderung der Oxydationsstufe zwischen Atomen des gleichen Elements, z. B.

$$Fe^{II} + {}^*Fe^{III} \rightleftharpoons Fe^{III} + {}^*Fe^{II}. \qquad (15.26)$$

Der Elektronenaustausch ist somit der Spezialfall einer Redoxreaktion. Die wechselseitige Änderung der Oxydationsstufe kann entweder durch Übertragung von Elektronen oder durch Übertragung von Liganden bewirkt werden. Die Art der Liganden spielt dabei eine wesentliche Rolle.

Die Untersuchung von Isotopen- bzw. Elektronenaustauschreaktionen ist nur mit Hilfe von markierten Atomen oder Molekülen möglich. Selbstverständlich können aber auch andere Reaktionen unter

Verwendung von Radionukliden als Indikatoren verfolgt werden. Dies ist wegen der hohen Empfindlichkeit der radiochemischen Methoden oft von großem Vorteil.

15.5.4. Heterogene Reaktionskinetik

In der heterogenen Reaktionskinetik ergeben sich ähnliche Anwendungsmöglichkeiten wie in der homogenen Reaktionskinetik, sowohl hinsichtlich der Aufklärung von Reaktionsmechanismen als auch hinsichtlich der Bestimmung von kinetischen Daten.

Bei heterogenen Isotopenaustauschreaktionen kann entweder die Reaktion an der Phasengrenzfläche oder die Diffusion in einer Phase geschwindigkeitsbestimmend sein. Für beide Fälle lassen sich Beziehungen herleiten, die der McKayschen Gleichung analog sind und eine einfache Auswertung der Versuchsergebnisse erlauben. In der Praxis sind die Reaktionen zwischen einer festen Phase einerseits und einer flüssigen bzw. gasförmigen Phase andererseits am interessantesten. Wenn die Reaktion an der Phasengrenzfläche geschwindigkeitsbestimmend ist und die Diffusion im Inneren der festen Phase vernachlässigt werden kann, so gilt

$$\ln(1-\lambda) = -\frac{k}{V}(n_1 + n_2)\,t. \qquad (15.27)$$

Der Ableitung dieser Gleichung liegt die Annahme zugrunde, daß die Reaktion nach einem Platzwechselmechanismus verläuft. λ ist wiederum der Austauschgrad nach Gl. (15.22), n_1 die Molzahl der austauschfähigen Komponente an der Oberfläche der festen Phase, n_2 die Molzahl der austauschfähigen Komponente in der Lösung bzw. im Gasraum und V das Volumen der flüssigen bzw. gasförmigen Phase. Gl. (15.27) entspricht einer Geschwindigkeitsgleichung 2. Ordnung. Wenn die Diffusion in der Lösung oder in der Gasphase der geschwindigkeitsbestimmende Schritt ist, so folgt

$$\ln(1-\lambda) = -k_\mathrm{D}\frac{n_1 + n_2}{n_1}\,t. \qquad (15.28)$$

Diese Gleichung entspricht einer Geschwindigkeitsgleichung 1. Ordnung. k_D ist durch die für die Diffusion charakteristischen Parameter

gegeben. Wenn die Abmessungen (z. B. der Radius r) der Bestandteile der festen Phase sehr viel größer sind als die Dicke δ der Diffusionsschicht ($r \gg \delta$), so ist $k_D = \frac{FD}{V\delta}$; im umgekehrten Fall ($r \ll \delta$) gilt $k_D = \frac{FD}{Vr}$. F ist die Gesamtoberfläche der festen Phase, D der Diffusionskoeffizient und V das Volumen der flüssigen bzw. gasförmigen Phase.

Ein Beispiel für eine heterogene Austauschreaktion ist der Austausch zwischen gasförmigem Kohlendioxid und festen Carbonaten,

$$Ba^{14}CO_3 + CO_2 \rightleftharpoons BaCO_3 + {}^{14}CO_2 . \tag{15.29}$$

Diese Austauschreaktion findet nur in Gegenwart von Wasserdampf statt, z. B. an feuchter Luft. Sie muß berücksichtigt werden, wenn C–14 in Form von festen Carbonaten aufbewahrt oder gemessen wird. An feuchter Luft tritt infolge dieser Austauschreaktion ein Aktivitätsverlust ein, dessen Geschwindigkeit vom Verteilungszustand der festen Phase abhängig ist. Heterogene Isotopenaustauschreaktionen können allgemein zur Untersuchung von Reaktionen an der Oberfläche von festen Verbindungen herangezogen werden. Bei Ionenkristallen muß man unterscheiden zwischen dem Austausch von Kationen und Anionen. Die Zahl der austauschfähigen Kationen bzw. Anionen hängt von der Oberflächenbeschaffenheit ab (Kationenkörper bzw. Anionenkörper), in vielen Fällen auch von der Temperatur. An Metalloberflächen wird oft durch Korrosionsvorgänge oder Adsorption an der Deckschicht ein Isotopenaustausch vorgetäuscht. Nur bei Edelmetallen ist die Metalloberfläche unmittelbar einer Austauschreaktion zugänglich. Bei unedlen Metallen ist es mit Hilfe der Indikatormethode möglich, Korrosionsvorgänge bereits in einem sehr frühen Stadium zu erkennen und z. B. durch Autoradiographie sichtbar zu machen (Abb. (6–37)).

Der heterogene Isotopenaustausch wird auch zur Oberflächenbestimmung von Ionenkristallen herangezogen. Wenn Gleichverteilung der markierten Ionen zwischen der Oberfläche eines Ionenkristalls und einer Lösung vorliegt, gilt die erstmals von PANETH angegebene Beziehung

$$\frac{{}^*N_o}{N_o} = \frac{{}^*N_L}{N_L}. \tag{15.30}$$

$^*N_o$ ist die Zahl der radioaktiven Atome oder Ionen an der Oberfläche, $^*N_L$ die Zahl der radioaktiven Atome oder Ionen in der Lösung. N_o bzw. N_L sind die Gesamtzahlen dieser Atome oder Ionen. Man mißt die Impulsrate I_o der Lösung vor Zugabe des Bodenkörpers und die Impulsrate I der Lösung nach Einstellung des Verteilungsgleichgewichtes zwischen der Oberfläche des Bodenkörpers und der Lösung. Dann erhält man unter Berücksichtigung von Gl. (15.30)

$$\frac{I_o}{I} = \frac{^*N_o + {^*N_L}}{^*N_L} = \frac{^*N_o}{^*N_L} + 1 = \frac{N_o}{N_L} + 1. \qquad (15.31)$$

Setzt man

$$N_o = \frac{F}{f}, \qquad (15.32)$$

worin F die Gesamtoberfläche und f das Oberflächenäquivalent eines austauschfähigen Ions sind, und

$$N_L = c_L \cdot V \cdot L, \qquad (15.33)$$

so folgt

$$F = \left(\frac{I_o}{I} - 1\right) f c_L V L. \qquad (15.34)$$

c_L ist die Konzentration der austauschfähigen Ionen in der Lösung, V das Volumen der Lösung und L die Loschmidtsche Zahl. Das Oberflächenäquivalent eines austauschfähigen Ions kann aus der Oberfläche einer Elementarzelle oder aus dem Molekulargewicht M und der Dichte ρ nach der Gleichung

$$f = \left(\frac{M}{\rho L}\right)^{2/3} \qquad (15.35)$$

näherungsweise berechnet werden. Da der Wert von f davon abhängt, ob es sich um Äquivalentkörper, Kationenkörper oder Anionenkörper handelt, können aus der Messung des heterogenen Isotopenaustausches Aussagen über die Oberflächenbeschaffenheit hergeleitet werden, wenn die Oberfläche gleichzeitig nach einer anderen Methode (z. B. der BET-Methode) bestimmt wird. Bei der Oberflächenbestimmung durch heterogenen Isotopenaustausch ist es immer zweckmäßig, den Aktivitätsabfall in der Lösung als Funktion der Zeit zu verfolgen, weil sich dem verhältnismäßig rasch verlaufenden Isotopenaustausch

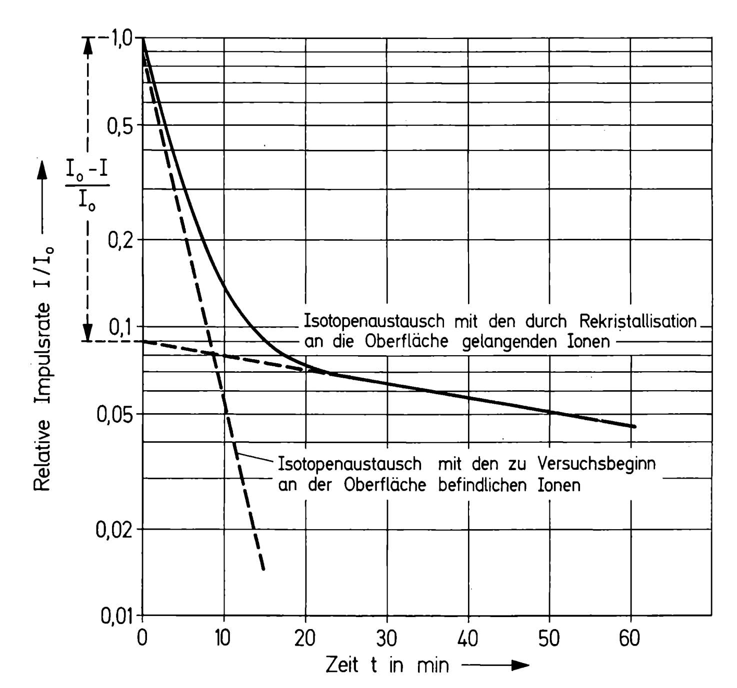


Abb. (15–7) Oberflächenbestimmung durch Isotopenaustausch; Aktivitätsabfall in der Lösung als Funktion der Zeit.

mit der zu Versuchsbeginn vorhandenen Oberfläche meist ein langsamer Vorgang überlagert (vgl. Abb. (15–7)). Dieser langsame Vorgang beruht auf der Rekristallisation des Bodenkörpers unter dem Einfluß der Lösung; durch diese kontinuierliche Rekristallisation, die bei vielen Ionenkristallen beobachtet wird, findet eine ständige Erneuerung der Oberfläche statt, so daß sich der Austauschvorgang fortsetzt.

Die Messung des heterogenen Isotopenaustausches als Funktion der Zeit ist auch ein geeignetes Mittel zur Untersuchung der Kinetik von Fällungsreaktionen. Dies kann in der Weise geschehen, daß man zu verschiedenen Zeiten nach Beginn der Fällung trägerfreie Mengen eines isotopen Radionuklids zufügt und den Aktivitätsabfall als Funktion der Zeit verfolgt. Durch Auswertung dieser Versuche können quantitative Aussagen über den Verlauf der Fällung, die Reifung und die Rekristallisation des Bodenkörpers gewonnen werden.

15.5.5. Diffusion

Die Indikatormethoden besitzen wegen ihrer hohen Empfindlichkeit große Bedeutung für die Bestimmung von Diffusionskoeffizienten. Besonders interessant ist die Messung der Selbstdiffusion, d. h. der Diffusion der Bestandteile der betreffenden Substanz; diese kann nur mit der Indikatormethode erfaßt werden.

Die meisten Untersuchungen liegen vor über die Selbstdiffusion in festen Körpern. Da die Diffusionsgleichungen nur dann gelöst werden können, wenn bestimmte Randbedingungen eingehalten werden, beschränkt man sich im allgemeinen auf einfache Versuchsanordnungen. Als Grenzfläche wird meist eine Ebene vorgegeben (z. B. die Stirnfläche eines Zylinders) oder eine Kugeloberfläche oder die Mantelfläche eines Zylinders. Der Indikator wird bei Versuchsbeginn entweder in Form einer praktisch „unendlich dünnen" Schicht oder einer „unendlich dicken" Schicht angewendet. Die letztgenannte Anordnung kann man z. B. dadurch erreichen, daß zwei Versuchskörper, von denen der eine den Indikator in homogener Verteilung enthält, aneinandergepreßt werden. Eine praktisch „unendlich dünne" Schicht kann durch Aufdampfen, elektrolytische Abscheidung, chemische Reaktion an der Oberfläche oder Isotopenaustausch markiert werden. Nach Beendigung des Versuches kann der Versuchskörper mechanisch oder durch Auflösung in Schritten zerlegt werden. Diese Verfahren liefern im allgemeinen die zuverlässigsten Versuchsergebnisse. Nach Markierung einer „unendlich dünnen" Schicht kann man auch die Abnahme der Impulsrate an der Oberfläche messen. Bei dieser Methode geht man davon aus, daß der radioaktive Indikator sich nach dem Diffusionsgesetz im Versuchskörper ausbreitet. Ein Teil der Strahlung wird im Versuchskörper absorbiert. Aus der Abnahme der Impulsrate und dem Absorptionskoeffizienten für die betreffende Strahlung errechnet man die mittlere Eindringtiefe des Indikators in den Versuchskörper und daraus den Diffusionskoeffizienten. Durch Autoradiographie ist es möglich festzustellen, ob die Diffusion innerhalb des Versuchskörpers gleichmäßig erfolgt (Volumendiffusion) oder nur an den Korngrenzen (Korngrenzendiffusion).

Eine sehr elegante Methode zur Bestimmung von Diffusionskoeffizienten in festen Körpern ist die Rückstoßmethode, die erstmals von Hevesy und Seith angewendet wurde. Die Versuchsanordnung ist in Abb. (15–8) skizziert. Blei wird an der Oberfläche mit Pb–212 markiert, das nach folgendem Schema zerfällt:

$$
{}^{212}\mathrm{Pb} \xrightarrow[10{,}6\,\mathrm{h}]{\beta^-} {}^{212}\mathrm{Bi} \begin{array}{c} \xrightarrow{\beta-} {}^{212}\mathrm{Po} \xrightarrow[0{,}3\,\mu s]{\alpha} \\ 60{,}6\,\mathrm{min} \qquad\qquad 3{,}1\,\mathrm{min} \\ \xrightarrow{\alpha} {}^{208}\mathrm{Tl} \xrightarrow{\beta-} \end{array} {}^{208}\mathrm{Pb}. \tag{15.36}
$$

Beim α-Zerfall des Bi–212 erhält das Tochternuklid Tl–208 einen Rückstoß, der bewirkt, daß je nach der Eindringtiefe des Pb–212 eine mehr oder weniger große Anzahl von Atomen des Tl–208 nach außen

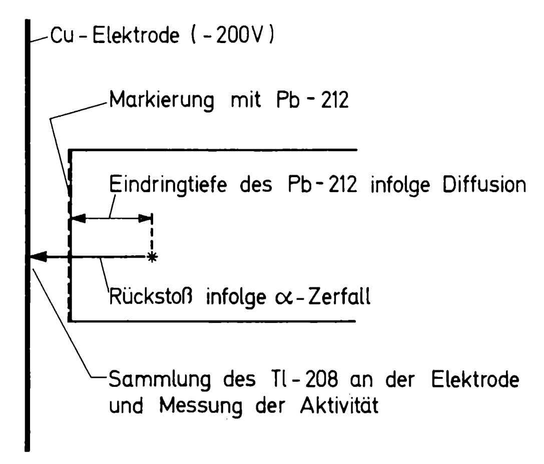


Abb. (15–8) Bestimmung von Selbstdiffusionskoeffizienten nach der Rückstoßmethode.

gelangt. Die Atome werden auf einer Kupferelektrode, die ein negatives Potential von etwa –200 V besitzt, gesammelt; anschließend wird die β^--Aktivität des Tl–208 gemessen. Wenn die Reichweite der Rückstoßatome bekannt ist, kann über die mittlere Eindringtiefe der Diffusionskoeffizient berechnet werden. Die Anwendung der Rückstoßmethode ist auf solche α-Strahler begrenzt, die sich in ein radioaktives Tochternuklid umwandeln.

Die Empfindlichkeit der Messung von Diffusionskoeffizienten in festen Körpern hängt sehr stark von der Methode ab. Ohne Zerlegung des Versuchskörpers können nach der Absorptionsmethode mit β-Strahlern Diffusionskoeffizienten bis zu etwa 10^{-10} cm^2 s^{-1} gemessen werden, mit α-Strahlern bis zu etwa 10^{-12} cm^2 s^{-1}; mit der Rückstoßmethode werden Empfindlichkeiten von etwa 10^{-19} cm^2 s^{-1} erreicht. Die mechanische Zerlegung des Versuchskörpers bewirkt im

allgemeinen nur eine verhältnismäßig geringe Empfindlichkeit ($D \approx 10^{-8}\,\mathrm{cm^2\,s^{-1}}$). Mit der Methode der Auflösung in Schritten können dagegen Diffusionskoeffizienten bis zu etwa $10^{-18}\,\mathrm{cm^2\,s^{-1}}$ gemessen werden. Weitere Vorteile dieser Methode sind, daß der tatsächliche Konzentrationsverlauf aufgenommen wird und alle Radionuklide als Indikatoren verwendet werden können.

Wenn die Diffusion in Flüssigkeiten oder Gasen gemessen werden soll, so muß die Vermischung durch Konvektion ausgeschlossen werden. Es sind verschiedene experimentelle Anordnungen gebräuchlich (Diffusionsrohr, Diaphragma, Kapillare). Die Indikatormethoden haben z. B. Bedeutung gewonnen für die Messung der Diffusion gelöster Bestandteile in Abhängigkeit vom pH-Wert; denn daraus sind Rückschlüsse auf die Größe der Moleküle möglich.

Auch für die Untersuchung anderer Transportvorgänge — z. B. innerhalb von Ionenaustauschern oder in Trennsäulen — sind die Indikatormethoden wichtig.

15.5.6. Emaniermethode

Unter dem Emaniervermögen versteht man nach HAHN den Bruchteil des radioaktiven Edelgases, der aus einem Festkörper austritt, bezogen auf die Menge des in diesem Körper gebildeten Edelgases. Das Emaniervermögen hängt ab von der Zusammensetzung des Festkörpers, seiner Kristallstruktur und insbesondere von der spezifischen Oberfläche, außerdem von der Halbwertzeit und der Rückstoßenergie des Edelgases sowie von der Temperatur. Die Messung des Emaniervermögens ermöglicht somit Aussagen über die Vorgänge, die in dem Festkörper stattfinden. Mit der Theorie des Emaniervermögens beschäftigten sich ZIMEN und FLÜGGE; neuere Untersuchungen wurden von ZIMEN ausgeführt.

Der Austritt des radioaktiven Edelgases aus dem Festkörper kann entweder durch Rückstoß oder durch Diffusion erfolgen. Die Rückstoßreichweite der durch α-Zerfall entstehenden Atome der Radonisotope beträgt in Luft etwa 100 μm und in festen Stoffen etwa 0,01 μm. Wenn diese Reichweite R sehr viel kleiner ist als der Radius r der Körner bzw. Kristallite des Festkörpers, so gelangt durch Rückstoß der Bruchteil

$$E_{\mathrm{R}} = \frac{R}{4}\frac{F}{V} \tag{15.37}$$

Tabelle 15.4.
Verschiedene Möglichkeiten für die Entstehung von radioaktiven Edelgasen, die zur Untersuchung des Emaniervermögens verwendet werden können

a) Entstehung radioaktiver Edelgase in den Zerfallsreihen

$$^{226}Ra \xrightarrow[1602\,a]{\alpha,\,\gamma} {}^{222}Rn \xrightarrow[3{,}8\,d]{\alpha,\,\gamma} {}^{218}Po$$

$$^{228}Th \xrightarrow[1{,}9\,a]{\alpha,\,\gamma} {}^{224}Ra \xrightarrow[3{,}64\,d]{\alpha,\,\gamma} {}^{220}Rn \xrightarrow[55\,s]{\alpha,\,\gamma} {}^{216}Po$$

$$^{227}Ac \xrightarrow[21{,}6\,a]{98{,}8\%\,\beta^-} {}^{227}Th \xrightarrow[18{,}2\,d]{\alpha,\,\gamma} {}^{223}Ra \xrightarrow[11{,}4\,d]{\alpha,\,\gamma} {}^{219}Rn \xrightarrow[4{,}0\,s]{\alpha,\,\gamma} {}^{215}Po$$

b) Entstehung radioaktiver Edelgase durch Kernreaktionen

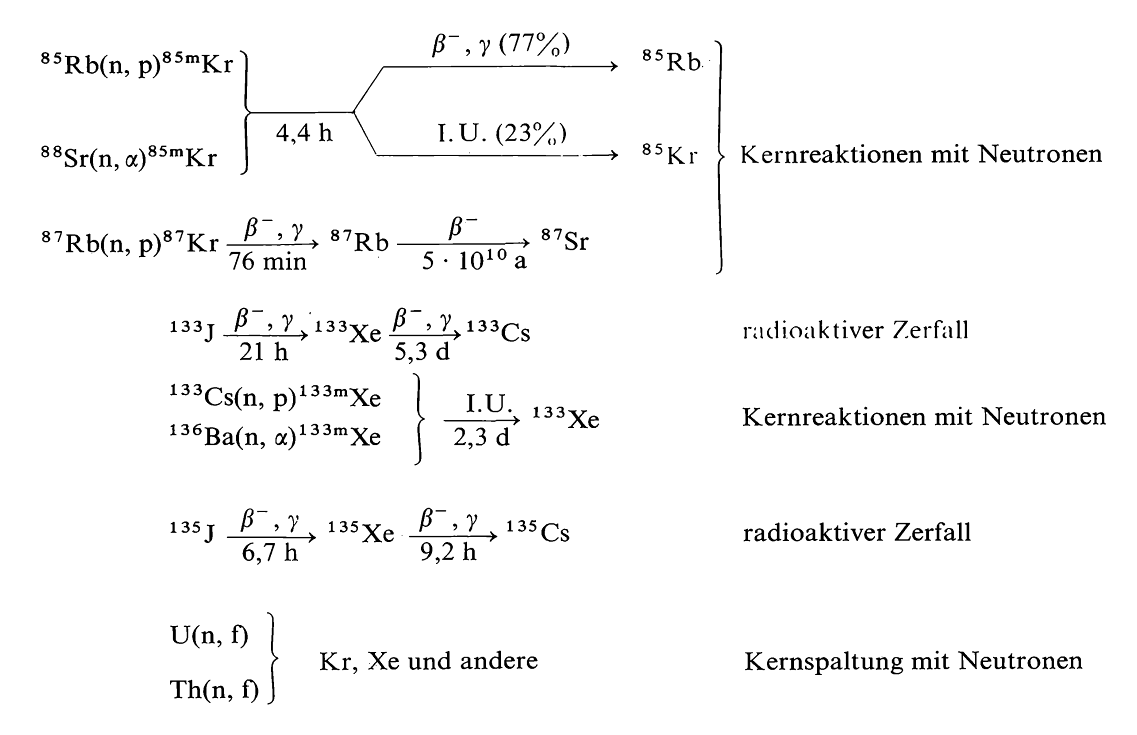
$$^{40}Ca(n,\alpha)^{37}Ar \xrightarrow[35\,d]{K} {}^{37}Cl$$

$$^{41}K(n,\,p)^{41}Ar \xrightarrow[1{,}83\,h]{\beta^-,\,\gamma} {}^{41}K$$

(beide: Kernreaktionen mit Neutronen)

$$^{83}Br \xrightarrow[2{,}4\,h]{\beta^-,\,\gamma} {}^{83m}Kr \xrightarrow[1{,}9\,h]{I.U.\,(e^-)} {}^{83}Kr$$

radioaktiver Zerfall


$^{85}Rb(n, p)^{85m}Kr$
$^{88}Sr(n, \alpha)^{85m}Kr$
4,4 h
β^-, γ (77%)
I. U. (23%)
^{85}Rb
^{85}Kr
Kernreaktionen mit Neutronen
$^{87}Rb(n, p)^{87}Kr \xrightarrow[76\ min]{\beta^-, \gamma} {}^{87}Rb \xrightarrow[5 \cdot 10^{10}\ a]{\beta^-} {}^{87}Sr$
$^{133}J \xrightarrow[21\ h]{\beta^-, \gamma} {}^{133}Xe \xrightarrow[5,3\ d]{\beta^-, \gamma} {}^{133}Cs$
radioaktiver Zerfall
$^{133}Cs(n, p)^{133m}Xe$
$^{136}Ba(n, \alpha)^{133m}Xe$
$\xrightarrow[2,3\ d]{I.U.} {}^{133}Xe$
Kernreaktionen mit Neutronen
$^{135}J \xrightarrow[6,7\ h]{\beta^-, \gamma} {}^{135}Xe \xrightarrow[9,2\ h]{\beta^-, \gamma} {}^{135}Cs$
radioaktiver Zerfall
U(n, f)
Th(n, f)
Kr, Xe und andere
Kernspaltung mit Neutronen

nach außen. F ist die Oberfläche eines Korns bzw. Kristalliten und V das Volumen. Für das Emaniervermögen infolge Diffusion gilt, wenn $r \gg R$ und $r^2 \lambda \gg D$ (Diffusionskoeffizient) ist,

$$E_{\mathrm{D}} = \sqrt{\frac{D}{\lambda}} \frac{F}{V}. \tag{15.38}$$

Das Gesamtemaniervermögen beträgt

$$E = E_{\mathrm{R}} + E_{\mathrm{D}}. \tag{15.39}$$

Besteht der Festkörper aus einem Aggregat von Körnern oder Kristalliten, so hängt das weitere Schicksal des Edelgases davon ab, wie stark die Wechselwirkung mit diesen anderen Bestandteilen des Festkörperverbandes ist, ob eine Absorption an der Oberfläche stattfindet und wie schnell das Edelgas aus dem — evtl. porösen — Festkörperverband herausdiffundiert. In den meisten Fällen treffen die Rückstoßatome zunächst auf die Oberfläche eines anderen Korns oder Kristalliten auf, dringen dort ein und gelangen erst mit einer gewissen Verzögerung nach außen. Die Diffusion in einem porösen Festkörper wird durch Anwesenheit von Wasser sehr stark behindert.

Für die Untersuchung des Emaniervermögens werden am häufigsten die Radonisotope verwendet. Sie entstehen alle aus Radiumisotopen, diese wiederum aus Thoriumisotopen (vgl. Tabn. 5.1. bis 5.4.). Man kann entweder die Radiumisotope oder die Thoriumisotope in den zu untersuchenden Festkörper einbringen. Es ist aber auch möglich, andere Edelgase (Xenon oder Krypton) oder deren Vorläufer durch Kernreaktionen zu erzeugen. Einige Möglichkeiten sind in Tab. 15.4. zusammengestellt.

Die Muttersubstanz des Edelgases kann Bestandteil des Festkörpers sein, durch Mitfällung in den Festkörper eingebracht oder nachträglich auf der Oberfläche abgeschieden werden. Dementsprechend muß man verschiedene Möglichkeiten der Verteilung unterscheiden: homogene Verteilung, Anreicherung im Innern, Anreicherung an der Oberfläche.

Bei Salzen, Gläsern oder erhitzten Metalloxiden ist das Emaniervermögen meist gering ($\lesssim 1\%$), bei Hydroxiden dagegen hoch (20 bis 100%). Es hängt im einzelnen sehr stark von den Herstellungsbedingungen und der Nachbehandlung der Präparate ab. Präparate mit sehr

hohem Emaniervermögen (70 bis 100%) werden als Emanationsquellen hergestellt, z. B. Th–228 oder Ra–226 auf Eisenhydroxid durch Mitfällung (Thorium als Hydroxid, Radium als Carbonat). Diese Emanationsquellen liefern durch radioaktiven Zerfall das Edelgas Radon (Emanation) das für chemische oder physikalische Untersuchungen verwendet werden kann. Größere Mengen Rn–222 (aus Ra–226) werden in der Medizin für therapeutische Zwecke verwendet.

Das Emaniervermögen wird entweder direkt durch Aktivitätsmessung des Edelgases bestimmt oder indirekt durch Messung der Folgeprodukte. Alle bekannten Isotope des Radons sind α-Strahler; sie werden am zweckmäßigsten in einer Ionisationskammer gemessen. Wenn die Folgeprodukte der Radonisotope gemessen werden sollen, muß auf die Einstellung des radioaktiven Gleichgewichts geachtet werden.

Durch Messung des Emaniervermögens können Umwandlungen und Zersetzungsreaktionen in Festkörpern, Festkörperreaktionen oder Alterungsvorgänge in Niederschlägen verfolgt werden. In Abb. (15–9) ist das Emaniervermögen von Calciumcarbonat als Funktion

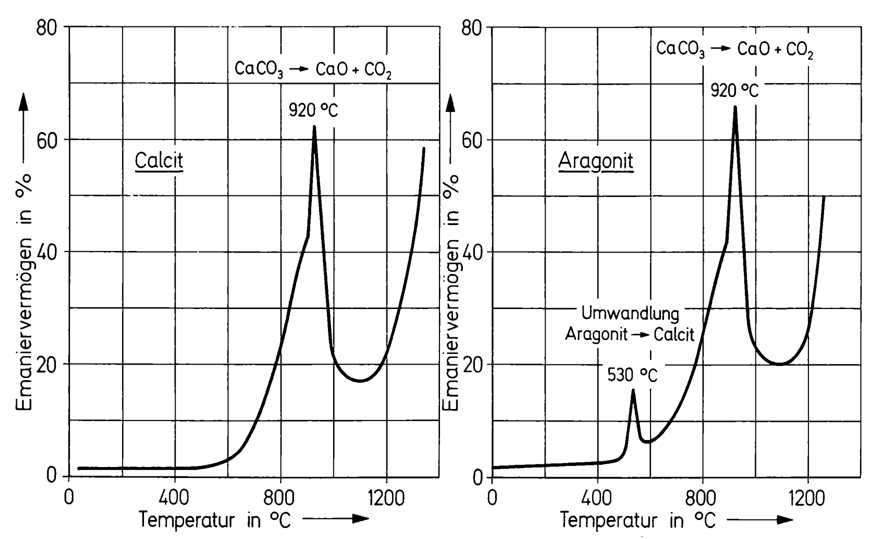


Abb. (15–9) Emaniervermögen von Calcit und Aragonit als Funktion der Temperatur. Nach K. E. Zimens: Z. physik. Chem. B **37** (1937) 231.

der Temperatur aufgezeichnet. Die Umwandlung von Aragonit in Calcit bei 530 °C und die Zersetzung des Calciumcarbonats in Calciumoxid und Kohlendioxid bei 920 °C geben sich durch einen steilen Anstieg im Emaniervermögen zu erkennen. In der Nähe von 1200 °C macht sich die erhöhte Beweglichkeit der Ionen im Calciumoxid be-

merkbar, die auch für die Sinterungsvorgänge verantwortlich ist. Ein Beispiel für die Untersuchung einer Festkörperreaktion mit Hilfe der Emaniermethode ist die Bildung von Bleimetasilikat (Herstellung von Bleiglas)

$$PbO + SiO_2 \longrightarrow PbSiO_3. \tag{15.40}$$

Eine Reaktion macht sich stets durch eine Erhöhung des Emaniervermögens bemerkbar; die quantitative Auswertung der Versuchsergebnisse ist jedoch im allgemeinen nicht einfach. Die Alterung von Thoriumhydroxid und Eisenhydroxid in Wasser ist aus Abb. (15–10) zu erkennen; die Änderung des Emaniervermögens dient als Maß für die Alterung. Auch Oberflächenbestimmungen und Dichtebestimmungen poröser Stoffe sind mit Hilfe der Emaniermethode möglich.

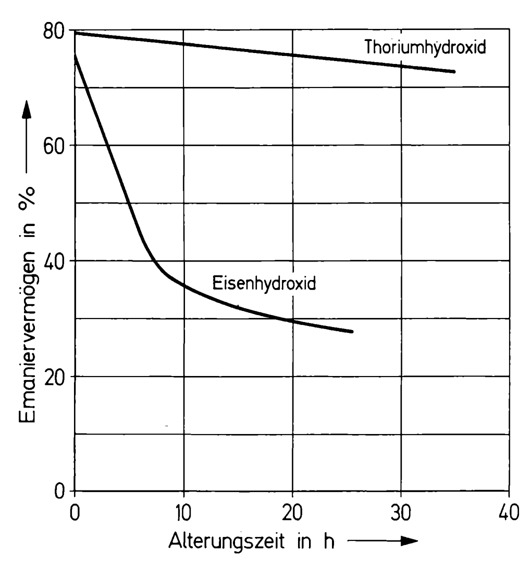


Abb. (15–10) Änderung des Emaniervermögens von Thoriumhydroxid und Eisenhydroxid als Maß für die Alterung: Emaniervermögen als Funktion der Alterungszeit in Wasser bei 100 °C. Nach O. Hahn u. G. Graue: Z. physik. Chem., Bodenstein-Festband 1931, S. 608.

15.5.7. Anwendung von Kernprozessen

Nur in Sonderfällen sind die Vorgänge in den Atomkernen von der chemischen Umgebung abhängig, in der sich die Kerne befinden, so daß aus dem Ablauf der Kernprozesse Rückschlüsse auf den chemischen Bindungszustand möglich sind. Diese Fälle sind im Hinblick auf die Anwendung in der Chemie besonders interessant.

Unmittelbar einleuchtend ist die Abhängigkeit des Elektroneneinfangs und der inneren Konversion vom Bindungszustand; denn an beiden Vorgängen sind Elektronen der Atomhülle beteiligt. Die Effekte sind sehr schwer erkennbar, wenn es sich nur um die Elektronen der K-Schale handelt; sie treten deutlicher hervor, sobald Elektronen höherer Schalen in diese Kernprozesse verwickelt sind. So wurde bei metallischem Beryllium und Berylliumfluorid ein Unterschied in der Halbwertzeit des Elektroneneinfangs von Be–7 festgestellt; im Berylliumfluorid ist die Halbwertzeit um etwa 0,08% größer. Die Halbwertzeit für die innere Konversion des Tc–99 m ist im metallischen Zustand um etwa 0,3% größer als im Pertechnetation. Diese höhere Zerfallswahrscheinlichkeit wird auf die größere Elektronendichte des Technetiums im Pertechnetation zurückgeführt. Auch durch Kompression von Technetiummetall wurde eine Erhöhung der Zerfallskonstante erreicht, ferner durch Abkühlung dieses Elements auf 4,2 °K; bei dieser Temperatur wird Technetium supraleitend.

Hinsichtlich der Winkelverteilung von Teilchen und Quanten, die in unmittelbarer Folge emittiert werden, kann ebenfalls eine Abhängigkeit vom Bindungszustand auftreten. Voraussetzung dafür ist, daß der Kern einen Spin und damit auch ein magnetisches Moment sowie ein elektrisches Quadrupolmoment besitzt. Diese Kernmomente treten in Wechselwirkung mit dem Feld in der Umgebung, so daß die Winkelverteilung durch den chemischen Zustand beeinflußt werden kann. Die Winkelverteilung wird meist durch das Verhältnis der unter 180° und 90° ausgesandten Teilchen bzw. Quanten angegeben. Wenn dieses Verhältnis von 1 abweicht, liegt Anisotropie vor. Der Effekt wurde beim Cd–111 eingehend untersucht, das durch Elektroneneinfang aus In–111 entsteht und 2 γ-Quanten aussendet.

Besondere Bedeutung hat der Mössbauereffekt erlangt, der mit sehr hoher Empfindlichkeit — d. h. noch bei einer Konzentration von einem radioaktiven Atom auf etwa 10^8 inaktive Atome — nachweisbar ist. Der Mössbauereffekt kann hier nur sehr kurz und qualitativ behandelt werden. Er beruht auf der Absorption von γ-Quanten ver-

hältnismäßig niedriger Energie (10 — 150 keV). Quelle und Absorber werden mit konstanter Geschwindigkeit zueinander bewegt. Die Energie der von einem freien Atom emittierten γ-Quanten ist etwas verschieden von der Energiedifferenz zwischen dem Anfangszustand und dem Endzustand des Kerns; denn ein Teil der Energie wird als Rückstoßenergie an den Kern abgegeben, und außerdem tritt wegen der thermischen Bewegung des Kerns eine Doppler-Verschiebung auf. Die gleichen Überlegungen gelten auch für den umgekehrten Vorgang, die Resonanzabsorption von γ-Quanten durch freie Atome. Das Ergebnis ist in Abb. (15–11) dargestellt. Der Rückstoßeffekt führt sowohl

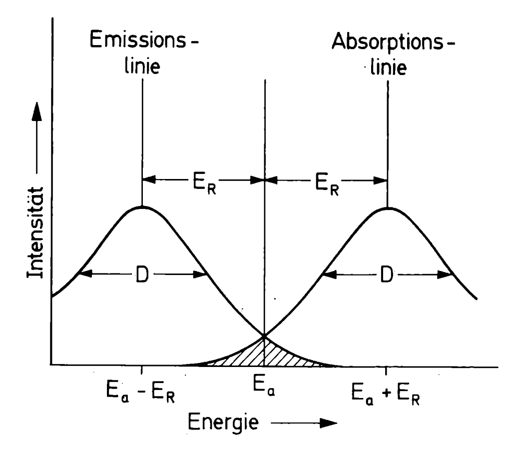


Abb. (15–11) Resonanzabsorption von γ-Quanten durch freie Atome (zur Erläuterung des Mössbauer-Effekts).
E_a = Anregungsenergie für den Übergang des Fe–57 in den angeregten Zustand (Resonanzenergie) — vgl. Abb. (15–12); E_R = Rückstoßenergie; D = Linienverbreiterung infolge des Dopplereffekts.

bei der Emission als auch bei der Absorption der γ-Quanten durch freie Atome zu einem Energieverlust, wodurch die Linien für die Emission und die Absorption auseinanderrücken; der Dopplereffekt bewirkt die Verbreiterung der Linien. Werden die Atome nun in einem Kristallgitter fixiert, dann wird ihre scheinbare Masse unendlich groß $\left(E_R = \frac{E_\gamma^2}{2mc^2}\right.$, vgl. Abschn. 9.5.$\left.\right)$. Bei Annäherung an den absoluten Nullpunkt wird zusätzlich die thermische Bewegung sehr stark herabgesetzt. Unter diesen Bedingungen entfällt die Rückstoßenergie weitgehend, und der Dopplereffekt spielt eine untergeordnete Rolle. Damit ist die „rückstoßfreie Resonanzabsorption“ erreicht. Diese wurde

von MÖSSBAUER bei der Untersuchung von Kristallen bei tiefer Temperatur gefunden. Die beobachteten Resonanzlinien zeigen im günstigsten Falle die doppelte natürliche Linienbreite; die natürliche Linienbreite ergibt sich aus der Heisenbergschen Ungenauigkeitsrelation. Sehr kleine Energieverschiebungen werden durch den Bindungszustand des emittierenden bzw. absorbierenden Atoms hervorgerufen. Wenn sich die Quelle und der Absorber in verschiedenem Bindungszustand befinden, tritt somit eine Energieverschiebung auf, die als chemische (oder isomere) Verschiebung bezeichnet wird. Diese Energieverschiebung kann mit großer Genauigkeit gemessen werden; denn die Relativbewegung von Quelle und Absorber ruft einen Dopplereffekt hervor, der ebenfalls zu einer Energieverschiebung der γ-Linien führt, die exakt angegeben werden kann. Bei Kernen mit einem Kernspin $I \geqslant 1$ tritt außerdem eine Quadrupolaufspaltung ein.

Die meisten Mössbauer-Untersuchungen werden mit Co–57 als Quelle ausgeführt, dessen Zerfallschema in Abb. (15–12) aufgezeichnet ist; als Absorber dient dabei Eisen natürlicher Isotopenzusammensetzung, das 2,17% Fe–57 enthält, oder es werden Präparate mit angereichertem Fe–57 verwendet. Mit Hilfe dieser Nuklide sind Aussagen über den chemischen Zustand — insbesondere über die Oxydationsstufe — des Eisens in festen Verbindungen möglich. Darüber hinaus können auch Angaben über den chemischen Zustand des in der

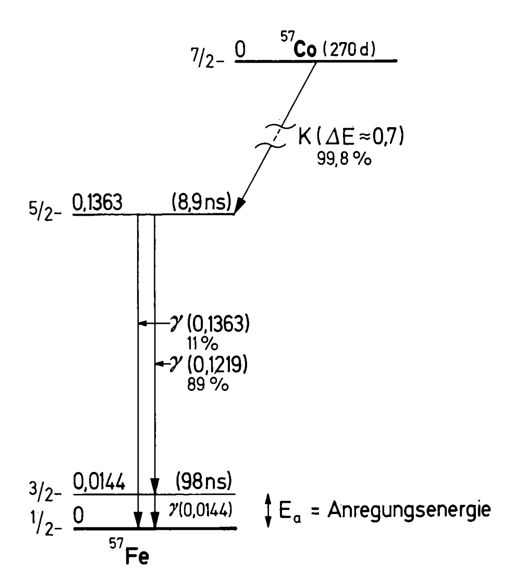


Abb. (15–12) Energiediagramm für den Zerfall des Co–57 (Energien in MeV). (Quelle für Mössbauer-Untersuchungen.)

Quelle aus Co–57 nach dem Zerfallschema Abb. (15–12) gebildeten Fe–57 gemacht werden. Infolge der hohen Empfindlichkeit der Aktivitätsmessungen können noch sehr kleine Konzentrationen erfaßt werden. Neben Fe–57 sind Sn–119 und viele weitere Nuklide von Interesse, die einen angeregten Zustand niedriger Energie besitzen, z. B. K–40, Ni–61, Zn–67, Kr–83, Ru–99, Ru–101, Ag–107, Sn–117, Sb–123, Te–125, J–127, Xe–129, Cs–133, La–139 und andere schwerere Nuklide.

15.6. Altersbestimmungen

Das radioaktive Zerfallsgesetz (Gl. (5.7.)) liefert eine von allen anderen Einflüssen unabhängige „Uhr"; denn aus der Änderung der Mengenverhältnisse kann bei bekannter Zerfallskonstante die Zeitdifferenz berechnet werden. Daraus ergeben sich vielfältige Möglichkeiten für Altersbestimmungen, die für die Geologie, Mineralogie und Archäologie von großer Bedeutung sind.

Vorschläge zur Altersbestimmung von Mineralen auf Grund der Zerfallsgesetze folgten bald nach der Aufklärung der Zerfallsreihen des Urans und des Thoriums. RUTHERFORD wies als erster auf die Möglichkeit hin, das Alter eines Uranminerals aus der Menge des gebildeten Heliums zu ermitteln.

Alle in der Natur vorkommenden Radionuklide können zu Altersbestimmungen herangezogen werden. Der Zeitbereich, in dem eine Altersbestimmung möglich ist, hängt von der Halbwertzeit des Radionuklids ab. Aus meßtechnischen Gründen sind solche Zeiträume günstig, die etwa der Größenordnung der Halbwertzeit der Radionuklide entsprechen. Für die Geologie sind an erster Stelle die langlebigen Mutternuklide der Uran-, Thorium- und Actinium-Familie von Interesse sowie andere langlebige Radionuklide, wie K–40 und Rb–87. Für die Altersbestimmung von Mineralen, die Uran oder Thorium enthalten, ist die genaue Kenntnis der Zerfallsreihen dieser Radioelemente wichtig (vgl. Tabn. 5.1., 5.3. und 5.4.). Die Einstellung des radioaktiven Gleichgewichts mit den Folgeprodukten wird jeweils durch die Halbwertzeit des langlebigsten Folgeprodukts in der Zerfallsreihe bestimmt. Dies ist in der Uran-Radium-Familie das U–234 ($t_{1/2} = 2{,}5 \cdot 10^5$ a), in der Thorium-Familie das Ra–228 ($t_{1/2} = 6{,}7$ a) und in der Actinium-Familie das Pa–231 ($t_{1/2} = 3{,}25 \cdot 10^4$ a). Das

radioaktive Gleichgewicht ist praktisch nach 10 Halbwertzeiten dieser Nuklide eingestellt; dann ist eine Altersbestimmung auf der Grundlage des radioaktiven Gleichgewichts möglich. Die Endprodukte der Zerfallsreihen sind die stabilen Nuklide Pb–206 bzw. Pb–208 und Pb–207. Ihre Menge wächst mit dem Alter des Minerals an, ebenso die Menge des durch α-Zerfall gebildeten Heliums.

Die Uran-Helium-Methode beruht auf der Bestimmung des Mengenverhältnisses von Uran zu Helium. Die Voraussetzungen für die Anwendung dieser Methode sind, daß kein Helium entwichen ist und die Entstehung des Heliums durch andere Prozesse — z. B. Zerfall von Thorium oder Spallationsreaktionen in Meteoriten — berücksichtigt wird. Die Methode ist sehr empfindlich und erlaubt noch eine Altersbestimmung, wenn der Urangehalt nur 1 ppm beträgt.

Bei der Uran-Blei-Methode wird das Mengenverhältnis Pb–206 zu U–238 bestimmt. Gleichzeitig wird im Massenspektrometer das Verhältnis der Bleiisotope gemessen. Fehlt Pb–204, so wird angenommen, daß das Pb–206 ausschließlich durch Zerfall des U–238 entstanden ist. Ist Pb–204 vorhanden, so wird eine dem natürlichen Isotopenverhältnis entsprechende Menge an Pb–206 in Abzug gebracht. Diese Methode liefert verhältnismäßig zuverlässige Werte. Fehler können entstehen, wenn das Blei im Laufe der Zeit ausgelaugt wurde.

Die Thorium-Blei-Methode, die auf der Bestimmung des Mengenverhältnisses Pb–208 zu Th–232 beruht, wird in der gleichen Weise angewendet wie die Uran-Blei-Methode.

Die Bestimmung des Mengenverhältnisses von Pb–206 zu Pb–207 ist eine recht zuverlässige Methode, die zur Bestimmung von hohen Alterswerten (einige 10^9 Jahre) geeignet ist. Fehler können auftreten durch Entweichen des Radons — weil die Halbwertzeiten von Rn–222 ($t_{1/2} = 3{,}8$ d) und Rn–219 ($t_{1/2} = 4{,}0$ s), die in den beiden Zerfallsreihen vorkommen, sehr verschieden sind — und durch Verluste an Blei; letztere machen sich um so stärker bemerkbar, je weiter sie zeitlich zurückliegen. Für den Gehalt an natürlichem Blei wird ebenso wie bei der Uran–Blei-Methode auf Grund des vorhandenen Pb–204 korrigiert. Somit genügt bei dieser Methode eine massenspektrometrische Bestimmung des Verhältnisses der Bleiisotope.

Das Isotopenverhältnis der Bleiisotope hat sich infolge der Entstehung von „radiogenem“ Blei aus Uran und Thorium im Laufe der Zeit geändert. Dies muß zum Teil bei den bisher erwähnten Methoden berücksichtigt werden. Außerdem kann bei Kenntnis des Isotopenverhältnisses der Uranisotope als Funktion der Zeit das Alter von sol-

chen Mineralen bestimmt werden, die Blei enthalten. In diesem Falle wird das Verhältnis Pb–204 zu Pb–206 (bzw. Pb–208) gemessen.

Bei der Kalium-Argon-Methode wird das Verhältnis Ar–40 zu K–40 bestimmt. K–40 wandelt sich nur zu 11,0% in Ar–40 um; im übrigen entsteht Ca–40. Für Glimmer liefert diese Methode zuverlässige Werte, bei anderen Mineralen sind die Verluste an Argon im Verlaufe geologischer Zeiträume zum Teil beträchtlich. Das aus K–40 entstehende Ar–40 trägt zum Argongehalt der Atmosphäre bei.

Die Rubidium-Strontium-Methode ergibt verhältnismäßig zuverlässige Werte, weil Edelgase weder als Zwischenprodukte noch als Endprodukte auftreten. Das Verhältnis Sr–87 zu Rb–87 wird am besten mit Hilfe eines Massenspektrometers bestimmt.

Für die Untersuchung von geologischen Vorgängen, die noch nicht so weit zurückliegen — z. B. Altersbestimmung von Sedimenten —, kommen auch solche natürlichen Radionuklide in Frage, die nicht extrem langlebig sind, wie Th–230 und Ra–226. Die Überlegungen sind in diesem Falle ähnlich wie bei den zuvor erläuterten Methoden.

Große Bedeutung besitzen auch die Radionuklide, welche durch die Einwirkung der kosmischen Strahlung erzeugt werden. Durch Spallationsprozesse entstehen neben Protonen, Neutronen und α-Teilchen auch die radioaktiven Nuklide T, Be–7 und Be–10. Tritium wird außerdem durch energiereiche Neutronen aus Stickstoff gebildet:

$$^{14}N\,(n, t)\,^{12}C. \tag{15.41}$$

Die thermischen Neutronen erzeugen C–14:

$$^{14}N\,(n, p)\,^{14}C. \tag{15.42}$$

Die Bildungsgeschwindigkeiten betragen etwa 2,4 Atome C–14 und 0,4 Atome T pro cm^2 Erdoberfläche und Sekunde. Wegen seiner langen Halbwertzeit vermischt sich der „Radiokohlenstoff“ C–14 durch Austausch- und Stoffwechselvorgänge vollständig mit einem größeren „Kohlenstoffreservoir“, das aus Kohlensäure, gelöstem Bicarbonat und organischen Stoffen besteht und im Mittel etwa 8 g Kohlenstoff pro cm^2 Erdoberfläche enthält. In den Kohlenstoffverbindungen, die an den Austausch- bzw. Stoffwechselvorgängen nicht teilnehmen, klingt die ^{14}C-Aktivität langsam ab. Auf diese Weise sind Altersbestimmungen von Holz und anderen kohlenstoffhaltigen Verbindungen möglich. Die Methode der ^{14}C-Datierung wurde insbesondere von

LIBBY entwickelt und ist inzwischen in der Archäologie unentbehrlich geworden. Die spezifische Aktivität des C–14 beträgt in einer frischen Probe — d. h. einer Probe aus dem Kohlenstoffreservoir — rund 0,27 tps pro Gramm Kohlenstoff und in einer Probe, die zehntausend Jahre alt ist, nur noch 0,081 tps. Deshalb sind für die Altersbestimmungen nach der ^{14}C–Methode sehr empfindliche Meßanordnungen erforderlich. Meist werden sogenannte „low level"-Meßplätze verwendet, die sich durch einen sehr niedrigen Untergrund auszeichnen. Voraussetzung für die Anwendung der Methode ist, daß sich die Bildungsgeschwindigkeit von C–14 gemäß Gl. (15.42) nicht geändert hat. In den letzten Jahrzehnten hat sich der prozentuale Gehalt an $^{14}CO_2$ in der Atmosphäre einerseits durch die Verbrennung fossiler Brennstoffe etwas erniedrigt; andererseits ist er infolge der Atom- bzw. Wasserstoffbombenexplosionen angestiegen, weil dabei große Mengen Neutronen in Freiheit gesetzt wurden.

Der Tritiumgehalt im Wasser schwankt im Bereich von etwa 10^{-18} bis 10^{-16} Atomen Tritium pro Atom Wasserstoff. Im Regenwasser ist der Tritiumgehalt am höchsten, in tieferen Schichten des Ozeans verhältnismäßig niedrig. Für hydrologische Studien ist die Bestimmung des Tritiumgehaltes von großer Bedeutung. Deshalb werden z. B. von der Internationalen Atomenergiebehörde Wasserproben aus allen Teilen der Welt gesammelt und auf ihren Tritiumgehalt untersucht. Auch Altersbestimmungen von Wein sind möglich. Infolge der Wasserstoffbombenexplosionen ist der Tritiumgehalt allerdings zum Teil erheblich angestiegen (insbesondere in der nördlichen Hemisphäre), so daß die Altersbestimmungen auf Grund des Tritiumgehaltes gestört sind. Vor der Messung des Tritiums wird meist zunächst eine Anreicherung durch eine ein- oder zweistufige Elektrolyse durchgeführt (vgl. Abschn. 4.9.).

15.7. Geochemie und Kosmochemie

Die Geochemie beschäftigt sich mit der Aufgabe, die Häufigkeit und die Verteilung der Elemente auf der Erdoberfläche und in den tieferen Schichten festzustellen und Transportvorgänge zu untersuchen. Man unterscheidet die Lithosphäre, die Hydrosphäre, die Biosphäre und die Atmosphäre. Die Bestimmung der Isotopenverteilung und der natürlichen Radionuklide spielt im Rahmen der Geochemie eine wichtige Rolle. Aufgabe der Kosmochemie ist das Studium der stofflichen

Zusammensetzung und der stofflichen Veränderungen in der Sonne, den Planeten, den Fixsternen und der interstellaren Materie. Ein besonders interessantes Forschungsobjekt sind die Meteoriten, die auf ihre Zusammensetzung und ihr Alter untersucht werden. Man unterscheidet Aerolithe (Steinmeteorite), Siderite (Eisenmeteorite) und Siderolithe (Mischungen der beiden Vorgenannten).

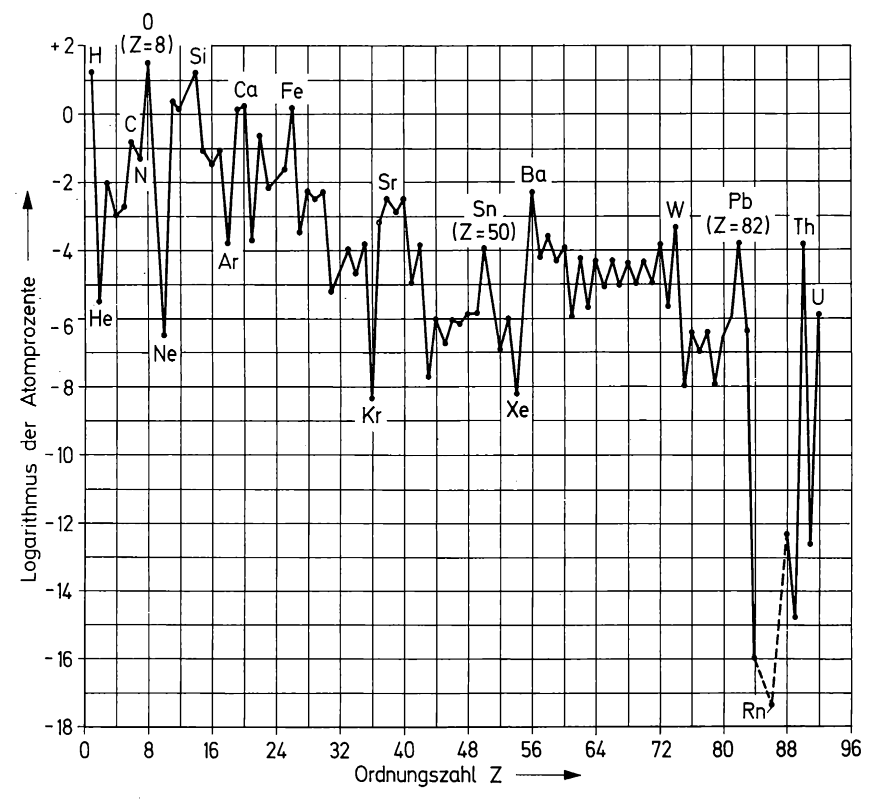


Abb. (15–13) Häufigkeit der Elemente auf der Erdoberfläche (Atomprozente als Funktion der Ordnungszahl).

Die Häufigkeit der Elemente auf der Erde ist in Abb. (15–13) in logarithmischem Maßstab als Funktion der Ordnungszahl aufgezeichnet. Nach allen bisherigen Informationen ist diese Häufigkeitsverteilung innerhalb des Sonnensystems etwa die gleiche. Besonders häufig sind Wasserstoff und Sauerstoff vertreten, dann die Elemente Kohlenstoff, Stickstoff, Silicium, Calcium und Eisen. Die magischen Zahlen $Z = 8$, 50 und 82 machen sich durch Maxima bemerkbar. In anderen Sternen — sowohl innerhalb als auch außerhalb der Milchstraße — wurden durch spektroskopische Messungen große Unter-

schiede festgestellt, vor allen Dingen hinsichtlich des Verhältnisses der schwereren Elemente zu Wasserstoff. Je kleiner dieses Verhältnis ist, desto älter sind die betreffenden Sterne.

Die bisherigen Kenntnisse über den Ablauf von Kernreaktionen — insbesondere thermonuklearen Reaktionen — bilden die Grundlage für die Entwicklung von Theorien über die Entstehung der Elemente. Im wesentlichen werden Fusionsreaktionen und (n, γ)-Reaktionen für die Entstehung der Elemente verantwortlich gemacht (vgl. Abschn. 8.10.). Auch die in Abb. (15–13) aufgezeichnete Häufigkeitsverteilung der Elemente läßt sich durch eine Vielzahl von aufeinanderfolgenden (n, γ)-Reaktionen erklären. Für das Alter der Elemente des Sonnensystems errechnete GAMOW auf diese Weise etwa $5 \cdot 10^9$ Jahre. Wenn man gewisse Annahmen über die Häufigkeit der Bleiisotope Pb–204, Pb–206 und Pb–207 bzw. der Uranisotope U–235 und U–238 oder des K–40 zum Zeitpunkt ihrer Entstehung macht, kann man aus der jetzt vorliegenden Häufigkeit ebenfalls das Alter dieser Elemente berechnen. Die Analyse von solchen Meteoriten, die vernachlässigbar kleine Mengen Uran enthalten, liefert für das Isotopenverhältnis Pb–206 zu Pb–204 bzw. Pb–207 zu Pb–204 die Werte 9,4 bzw. 10,3. Es erscheint sinnvoll, diese Werte als „Anfangswerte" für den Zeitpunkt der Entstehung der Elemente zugrunde zu legen. Dann erhält man aus dem jetzt vorliegenden Isotopenverhältnis der Bleiisotope und aus dem Verhältnis der Häufigkeiten von Uran und Blei für das Alter der Elemente den Wert $4{,}9 \cdot 10^9$ Jahre. Etwas jünger sollten die auf der Erde vorkommenden Gesteine sein. Die Altersbestimmungen liefern für die ältesten auf der Erde gefundenen Gesteine einen Wert von $3{,}0 \cdot 10^9$ Jahren.

Für die Kosmochemie sind die Kernreaktionen in Meteoriten von großem Interesse, die vorwiegend durch die hochenergetischen Protonen der kosmischen Strahlung hervorgerufen werden. Diese Protonen besitzen Energien von der Größenordnung 1 bis zu etwa 10^9 GeV. Daneben sind in der kosmischen Strahlung auch α-Teilchen und andere Ionen vorhanden. Die Messung der radioaktiven Nuklide, die in Meteoriten unter dem Einfluß der kosmischen Strahlung entstehen, erlaubt Aussagen über die Intensität der kosmischen Strahlung sowie das Alter der Meteorite und ihre Vorgeschichte.

In der Isotopenverteilung einzelner Elemente auf der Erdoberfläche machen sich Schwankungen bemerkbar, für die man Gleichgewichtsisotopieeffekte, kinetische Isotopieeffekte und Transportvorgänge verantwortlich macht. So enthält der freie Wasserstoff in der Atmo-

sphäre mehr Deuterium, als dem Austauschgleichgewicht zwischen Wasserstoff und Wasser entspricht. Der Deuteriumgehalt im Wasser schwankt zwischen 0,0123 und 0,0158 Atomprozent. In ähnlicher Weise variiert auch das Isotopenverhältnis der Sauerstoffisotope O–18 zu O–16 im Wasser und in anderen Verbindungen. In Tab. 15.5. sind einige Werte für das Isotopenverhältnis der Sauerstoffisotope

Tabelle 15.5.
Isotopenverhältnis von Sauerstoff-, Kohlenstoff- und Schwefelisotopen in verschiedenen Proben

Herkunft der Probe	$^{16}O/^{18}O$
frisches Wasser	488,95
Ozeanwasser	484,1
Wasser aus dem Toten Meer	479,37
atmosphärische Luft	474,72
O_2 aus der Photosynthese	486,04
CO_2 aus der Luft	470,15
Carbonate	470,61
	$^{12}C/^{13}C$
atmosphärisches CO_2	91,5
Kalkstein	88,8 – 89,4
Schalen von Seetieren	89,5
Seewasser	89,3
Meteoriten	89,8 – 92,0
Kohle, Holz	91,3 – 92,2
Petroleum, Pech	91,3 – 92,8
Algen, Sporen	92,8 – 93,1
	$^{32}S/^{34}S$
Meerwassersulfate	21,5 – 22,0
vulkanischer Schwefel	21,9 – 22,2
magmatisches Gestein	22,1 – 22,2
Meteoriten	21,9 – 22,3
Lebewesen	22,3
Petroleum, Kohle	21,9 – 22,6

Werte aus:
S. R. Silverman: Geochim. Acta **2** (1951) 26.
B. F. Murphey, A. O. Nier: Physic. Rev. **59** (1941) 772.
E. K. Gerling, K. G. Rik, zit. v. A. P. Vinogradov: Bull Acad. Sci. USSR, Serie Geol., Nr. **3** (1954) 3.

O–16 und O–18, der Kohlenstoffisotope C–12 und C–13 sowie der Schwefelisotope S–32 und S–34 in verschiedenen Proben zusammengestellt.

Die Verteilung der Radioelemente Uran und Thorium und ihrer Tochternuklide in Gesteinen, Sedimenten und Erdöl sowie in Meteoriten gibt Hinweise auf die Entstehungsgeschichte. Ebenso ermöglicht die Bestimmung der Radioelemente Uran, Thorium, Radon und Radium in der Luft und in Wasser verschiedener Herkunft einen Einblick in die in der Atmosphäre und Hydrosphäre ablaufenden Prozesse.

15.8. Anwendungen in der Biologie und Medizin

In der Biochemie, Biologie und Medizin finden Radionuklide als Indikatoren sehr vielseitige Verwendung; C–14 und T spielen dabei die wichtigste Rolle, daneben auch P–32, S–35, J–131 und Fe–59. Außerdem werden in der Medizin große Mengen von Radionukliden für diagnostische und therapeutische Zwecke eingesetzt.

Im Rahmen der Indikatormethoden sind vor allen Dingen die Untersuchungen über die Photosynthese zu nennen, die mit C–14, T und P–32 durchgeführt wurden (Calvin seit 1940). Radionuklide und markierte Verbindungen sind ein unentbehrliches Hilfsmittel für die Aufklärung von Stoffwechselvorgängen in pflanzlichen und tierischen Organismen; auch stabile Nuklide wie N–15 und O–18 werden für diese Zwecke eingesetzt. Derartige Untersuchungen sind in der Medizin und Pharmazie von entscheidender Bedeutung, wenn es darum geht, den Verbleib von Medikamenten im Körper aufzuklären.

Die Aktivierungsanalyse ist ein wertvolles Hilfsmittel in der Toxikologie und Pharmakologie im Hinblick auf den Nachweis von Spurenelementen. Zum Zwecke der Funktionsprüfung von Organen werden Radionuklide in vielfältiger Weise verwendet. Ein gebräuchliches Verfahren ist der Schilddrüsentest mit J–131, bei dem nach der Applikation die Verteilung des in der Schilddrüse angereicherten J–131 von außen mit einem Szintillationszähler festgestellt wird. Die Blutzirkulation im Herzen kann mit Hilfe von Na–24 verfolgt werden. Das Verhalten von ^{32}P-markierten Nukleinsäuren im Körper wird von Tumoren beeinflußt und kann deshalb ebenfalls für die Diagnose herangezogen werden.

Verhältnismäßig große Mengen von Radionukliden werden für therapeutische Zwecke eingesetzt. Besonders vorteilhaft sind kurzlebige Radionuklide, deren Aktivität im Körper innerhalb kurzer Zeit abklingt. Bei der Anwendung des Radiums, das früher in der Radiologie vorwiegend verwendet wurde, mußte das radioaktive Präparat nach einer bestimmten Einwirkungszeit wieder entfernt werden — zum Teil auf operativem Weg. Die Therapie mit kurzlebigen Radionukliden hat in der Medizin sehr viele neue Möglichkeiten eröffnet. Beispielsweise wird das kurzlebige Radon in dünnwandige Röhrchen aus Gold eingefüllt und in den zu bestrahlenden Tumor eingeschossen; so wird eine lokale Bestrahlung erreicht und ein operativer Eingriff vermieden. In ähnlicher Weise können Lösungen von kurzlebigen Radionukliden in einen Tumor injiziert oder in das zu behandelnde Organ eingeführt werden.

15.9. Anwendungen in der Technik

Im Rahmen dieses Buches kann nur ein Überblick über die vielfältigen Anwendungen von Radionukliden in der Technik gegeben werden. Man kann folgende Möglichkeiten unterscheiden:

Radionuklide als Indikatoren;
Absorption und Streuung radioaktiver Strahlung;
durch radioaktive Strahlung hervorgerufene Prozesse.

In der chemischen Industrie werden Radionuklide als Indikatoren für die Untersuchung von Misch- und Trennvorgängen verwendet. Außerdem können Transporterscheinungen innerhalb von Fabrikationsanlagen aufgeklärt werden (z. B. Transport eines Katalysators). In der Metallindustrie werden Radionuklide zur Untersuchung von Diffusionsvorgängen in Metallen sowie zum Studium der Legierungsbildung eingesetzt. Eine wichtige Rolle spielt auch die Möglichkeit, Abrieberscheinungen (z. B. den Abrieb von Kolbenringen in einem Verbrennungsmotor) sowie Korrosionsvorgänge mit Hilfe von Radionukliden zu untersuchen. In der Wasserwirtschaft und in der Erdölindustrie ergeben sich mannigfaltige Anwendungsmöglichkeiten zur Untersuchung von Transportvorgängen. Beispielsweise kann die Strömung des Wassers im Boden mit Hilfe von tritiertem Wasser studiert werden; ein wesentlicher Vorteil ist die hohe Nachweisempfindlichkeit des Tritiums: 1 Atom Tritium kann noch neben 10^{19} Ato-

men Wasserstoff bestimmt werden. Zur Prüfung der Dichtigkeit von Leitungen werden vorzugsweise kurzlebige γ-Strahler verwendet, deren Austritt in den Boden von außen gemessen werden kann; dadurch wird die Lecksuche erheblich erleichtert. In Erdölleitungen kann man ein Radionuklid injizieren, um eine bestimmte Ölsorte zu markieren; auf diese Weise ist es möglich, eine Leitung für den Transport verschiedener Ölsorten zu verwenden. Durch Abtasten von Bohrlöchern mit einer kleinen Neutronenquelle kann man feststellen, wo sich Wasser oder Kohlenwasserstoffe befinden; da diese Stoffe wegen ihres hohen Gehaltes an Wasserstoff als Moderatoren wirken, entstehen thermische Neutronen, der Wirkungsquerschnitt der (n, γ)-Reaktionen steigt an und damit auch die Radioaktivität eines Targets, das zusammen mit der Neutronenquelle in das Bohrloch hinabgelassen wird.

Die Absorption oder Streuung der Strahlung von Radionukliden wird in der Industrie häufig zur Dickenmessung oder zur Werkstoffprüfung verwendet. So führt man bei der Produktionsüberwachung Metallfolien oder Papiere kontinuierlich zwischen einem Radionuklid und einem Detektor hindurch (vgl. Abb. (15–14)); der Ausschlag

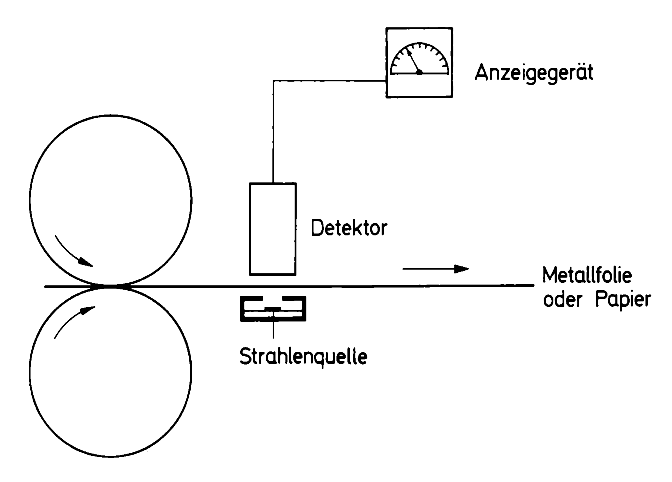


Abb. (15–14) Verwendung von Radionukliden zur Dickenmessung.

des Detektors ist ein Maß für die Dicke. Die Dickenmessung kann auch nach der Rückstrahlmethode erfolgen, z. B. wenn eine Auflage von Gold oder Platin auf einem anderen Metall niedrigerer Ordnungszahl bestimmt werden soll. Die Rückstreuung der β-Strahlung ist bei Elementen höherer Ordnungszahl erheblich größer (vgl. Abb. (6–13));

mit Hilfe einer Eichkurve ist eine Bestimmung der Schichtdicke möglich.

In vielen Fällen ist eine Ionisation erwünscht, beispielsweise bei einer Analysenwaage zur Beseitigung elektrischer Aufladungen, die zu Wägungsfehlern führen können, oder in einer Elektronenröhre zur Auslösung elektrischer Entladungen. In diesen Fällen setzt man häufig Radionuklide ein (z. B. 1 mCi Tl–204 in einer Analysenwaage). Zur Erzeugung von Lumineszenzerscheinungen benutzt man ebenfalls Radionuklide, z. B. in der Leuchtmasse, mit der die Zahlen auf dem Zifferblatt einer Uhr beschriftet werden. Früher verwendete man vorzugsweise Ra–228, heute in größerem Umfang Tritium, dessen energiearme Strahlung nicht nach außen dringt.

Die Erzeugung elektrischer Energie in sogenannten Isotopenbatterien ist ein sehr interessantes und wichtiges Gebiet der Technik, das hier nur am Rande erwähnt werden soll, weil es sich dabei nicht um die Anwendung kernchemischer Methoden, sondern um die technische Nutzung der beim radioaktiven Zerfall freiwerdenden Energie handelt. Tab. 15.6. gibt eine Übersicht über die Radionuklide, die für die Verwendung in Isotopenbatterien von Interesse sind (vgl. auch Abschn. 11.9.).

Tabelle 15.6.
Radionuklide, die in Isotopenbatterien Verwendung finden können

Radionuklid	$t_{1/2}$ in a	Strahlung	Herstellungsprozeß
^{90}Sr	28,1	β	Spaltprodukt
^{137}Cs	30	β, γ	Spaltprodukt
^{147}Pm	2,62	β	Spaltprodukt
^{60}Co	5,26	β, γ	Bestrahlung von ^{59}Co im Reaktor
^{227}Ac	21,6	α, β, γ	Bestrahlung von ^{226}Ra im Reaktor
^{238}Pu	86	α	Bestrahlung von ^{237}Np im Reaktor
^{232}U	72	α, γ	Bestrahlung von ^{230}Th im Reaktor
^{228}Th	1,91	α, γ	Bestrahlung von ^{227}Ac im Reaktor
^{244}Cm	17,6	α, γ	Bestrahlung von ^{242}Pu im Reaktor

Die Anwendung strahlenchemischer Methoden ist in der Technik ebenfalls von großem Interesse. Die Energie der γ-Strahlung, die von einer 1000 Ci ^{60}Co-Quelle pro Tag ausgesandt wird, entspricht etwa 300 kcal. Damit könnte man etwa 3,5 l Wasser von Zimmertemperatur bis zum Siedepunkt erhitzen. Diese Überlegung zeigt, daß die Wärmeenergie, die durch Absorption der γ-Strahlung gewonnen werden

kann, nur von untergeordneter Bedeutung ist. Wichtig ist die Tatsache, daß durch γ-Strahlung chemische Reaktionen mit einem hohen G-Wert ausgelöst werden können (vgl. Kap. 10). Starke Strahlenquellen, die größere Mengen von γ-Strahlern enthalten, finden Verwendung für die Sterilisierung von Lebensmitteln und von Gebrauchsgegenständen sowie für die Schädlingsbekämpfung.

Literatur zu Kapitel 15

1. O. HAHN: Applied Radiochemistry. Cornell University Press, Ithaca, New York 1936.
2. A. C. WAHL, N. A. BONNER: Radioactivity Applied to Chemistry. John Wiley and Sons, New York 1951.
3. K. E. ZIMEN: Angewandte Radioaktivität. Springer-Verlag, Berlin-Göttingen-Heidelberg 1952.
4. W. J. WHITEHOUSE, J. L. PUTMAN: Radioactive Isotopes – An Introduction to their Preparation, Measurement and Use. Clarendon Press, Oxford 1953.
5. F. HECHT, M. K. ZACHERL: Handbuch der mikrochemischen Methoden. Bd. II: Verwendung der Radioaktivität in der Mikrochemie. Springer-Verlag, Wien 1955.
6. D. TAYLOR: Neutron Irradiation and Activation Analysis. George Newnes Ltd., London 1964.
7. M. CALVIN, CH. HEIDELBERGER, J. C. REID, B. M. TOLBERT, P. E. YANKWICH: Isotopic Carbon–Techniques in its Measurement and Chemical Manipulation. John Wiley and Sons, New York 1949.
8. H. R. SCHÜTTE: Radioaktive Isotope in der organischen Chemie und Biochemie. Verlag Chemie, Weinheim/Bergstraße 1966.
9. G. K. WERTHEIM: Mössbauer Effect: Principles and Applications. Academic Press, New York 1964.
10. W. F. LIBBY: Radiocarbon Dating. University of Chicago Press 1955.
11. H. FAUL: Nuclear Geology. John Wiley and Sons, New York 1954.
12. T. P. KOHMAN, N. SAITO: Radioactivity in Geology and Cosmology. Annu. Rev. nuclear Sci. **4** (1954) 401.
13. H. E. SUESS: The Radioactivity of the Atmosphere and Hydrosphere. Annu. Rev. nuclear Sci. **8** (1958) 243.
14. L. T. ALDRICH, G. W. WETHERILL: Geochronology by Radioactive Decay. Annu. Rev. nuclear Sci. **8** (1958) 257.
15. A. G. W. CAMERON: Nuclear Astrophysics. Annu. Rev. nuclear Sci. **8** (1958) 299.
16. H. V. NEHER: The Primary Cosmic Radiation. Annu. Rev. nuclear Sci. **8** (1958) 217.
17. G. BURBRIDGE: Nuclear Astrophysics. Annu. Rev. nuclear Sci. **12** (1962) 507.
18. O. A. SCHAEFFER: Radiochemistry of Meteorites. Annu. Rev. physic. Chem. **13** (1962) 151.
19. E. H. GRAUL: Fortschritte der angewandten Radioisotopie und Grenzgebiete, 2 Bde., Dr. Alfred Hüthig Verlag, Heidelberg 1957.

20. E. BRODA, TH. SCHÖNFELD: Die technischen Anwendungen der Radioaktivität. Porta-Verlag, München 1956.
21. E. BRODA, TH. SCHÖNFELD: The Technical Applications of Radioactivity, Bd. 1. Pergamon Press, London 1966.

Übungen zu Kapitel 15

1. Zur Bestimmung von U–238 in 2 g eines Minerals wird das Thorium abgetrennt und die Aktivität des im Gleichgewicht vorhandenen Pa–234 m gemessen. Die Impulsrate beträgt 2610 ipm, die Gesamtzählausbeute der Meßanordnung $\eta = 20\%$. Wie groß ist der Gehalt des Minerals an Uran (in Gew.-%)?

2. Der K_2O-Gehalt von Mineralen kann durch Aktivitätsmessung in einem Zählrohr bestimmt werden. die Zählausbeute beträgt 10%, das Fassungsvermögen des Zählrohres 300 g. Wie lange muß man messen, um bei einem K_2O-Gehalt von 10 Gewichtsprozent einen Fehler $< 1\%$ zu erreichen?

3. Zur Bestimmung einer unbekannten Menge Phosphorsäure wird 1 ml einer trägerfreien ^{32}P-markierten Phosphorsäure zugesetzt, die eine Impulsrate von 87610 ipm pro ml liefert. Nach dem Mischen wird eine kleine Menge Phosphat abgetrennt und als Magnesiumpyrophosphat gefällt. Die Menge des $Mg_2P_2O_7$ beträgt 15,3 mg, die Impulsrate unter den gleichen Bedingungen wie oben 673 ipm. Wie groß ist die gesuchte Menge Phosphorsäure?

4. Zur Bestimmung von Sr–90 in einer größeren Substanzmenge (10g) werden 2 mMol Strontium in Form von Strontiumnitrat zugesetzt. Bei der Aufarbeitung werden 10 mg reines Strontiumcarbonat gewonnen; die Impulsrate dieser Probe beträgt 154 ipm, die Gesamtzählausbeute 12%. Wie groß ist der Gehalt der Substanz an Sr–90 (in μCi/ g)?

5. Wie groß ist bei einem Neutronenfluß von 10^{12} cm^{-2} s^{-1} die kleinste nachweisbare Menge Indium in einer 100 mg Probe von Aluminium? Der Nachweis erfolgt auf Grund der Kernreaktion $^{115}In(n, \gamma)^{116}In$, $\sigma = 45$ b. Es sei angenommen, daß zum Nachweis des Indiums eine Mindestaktivität von 10 tps erforderlich ist.

6. Man diskutiere die Möglichkeiten zur Bestimmung von
   a) Chloridionen in Magnesiumfluorid,
   b) Sauerstoff in Silicium,
   c) Eisen in Zirkonium

   durch Aktivierungsanalyse.

   Wie groß ist die Nachweisgrenze für die Beispiele a) und c), wenn maximal 1 Woche bei einer Flußdichte an thermischen Neutronen $\Phi = 10^{13}\ \text{cm}^{-2}\ \text{s}^{-1}$ bestrahlt werden soll und davon ausgegangen wird, daß eine Aktivität von 10 tps für den Nachweis erforderlich ist?

   $\sigma_{n,\gamma}$ (Cl–37) = 0,4 b; $\sigma_{n,\gamma}$ (Fe–58) = 1,1 b
   $\sigma_{n,\gamma}$ (Mg–26) = 0,027 b; $\sigma_{n,\gamma}$ (Zr–94) = 0,08 b
   $\sigma_{n,\gamma}$ (F–19) = 0,01 b $\sigma_{n,\gamma}$ (Zr–96) = 0,05 b
   $\sigma_{n,p}$ (O–16) = 0,08 b
   $\sigma_{n,p}$ (Si–28) = 0,25 b } für 14 MeV Neutronen
   $\sigma_{t,n}$ (O–16) = 0,1 b für 2,2 MeV Tritonen

7. Bei der Oberflächenbestimmung von Bariumsulfat durch heterogenen Isotopenaustausch werden in je 5 ml Lösung folgende Impulsraten gemessen: $I_0 = 2850$ ipm, $I = 1210$ ipm. Die Konzentration der austauschbaren Ionen in der Lösung beträgt 10^{-3} Mol/l, die Menge des festen Bariumsulfat 5 g und das Volumen der Lösung 100 ml. Wie groß ist die spezifische Oberfläche des Bariumsulfat? (Die Dichte von Bariumsulfat beträgt 4,50 g/cm^3).

8. In 100 g eines Uran-haltigen Minerals werden 0,06 cm^3 Helium (unter Normalbedingungen) gefunden. Der Urangehalt beträgt 3 ppm. Wie groß ist das Alter des Minerals?

9. Wie groß ist das Alter eines Minerals, das 22,4 mg Pb–206 pro g Uran enthält, wenn im Massenspektrometer für das Verhältnis Pb–204 : Pb–206 der Wert 1 : 35,7 gefunden wurde?

Anhang I.
Wichtige Naturkonstanten

Loschmidtsche Zahl	N_L	$= 6{,}02250 \cdot 10^{23}\,\mathrm{Mol}^{-1}$
Lichtgeschwindigkeit im Vakuum	c	$= 2{,}997925 \cdot 10^{10}\,\mathrm{cm\,s}^{-1}$
Plancksches Wirkungsquantum (Plancksche Konstante)	h	$= 6{,}6256 \cdot 10^{-27}\,\mathrm{erg\ s}$
Boltzmann-Konstante	k_B	$= 1{,}38054 \cdot 10^{-16}\,\mathrm{erg\ grad}^{-1}$
Gaskonstante	R	$= 8{,}3147 \cdot 10^{7}\,\mathrm{erg\,grad}^{-1}\,\mathrm{Mol}^{-1}$
		$= 1{,}9872\,\mathrm{cal\,grad}^{-1}\,\mathrm{Mol}^{-1}$
Faraday-Konstante	F	$= 96524\,\mathrm{A\,s\,Mol}^{-1}$
Elementarladung (Ladung eines Elektrons)	e	$= 1{,}6020 \cdot 10^{-19}\,\mathrm{A\,s}$
		$= 4{,}803 \cdot 10^{-10}\,\mathrm{ese}$
Ruhemasse des Elektrons	m_e	$= 9{,}10914 \cdot 10^{-28}\,\mathrm{g}$
		$= 0{,}548597 \cdot 10^{-3}\,\mathrm{ame}$
Ruhemasse des Neutrons	m_n	$= 1{,}67483 \cdot 10^{-24}\,\mathrm{g}$
		$= 1{,}0086652\,\mathrm{ame}$
Ruhemasse des Protons	m_p	$= 1{,}67252 \cdot 10^{-24}\,\mathrm{g}$
		$= 1{,}00727662\,\mathrm{ame}$
Masse des Wasserstoffatoms	M_H	$= 1{,}00782522\,\mathrm{ame}$
Spezifische Ladung des Elektrons	$\frac{e}{m}$	$= 1{,}7589 \cdot 10^{8}\,\mathrm{A\,s\,g}^{-1}$
Bohrsches Magneton	μ_B	$= 1{,}165 \cdot 10^{-29}\,\mathrm{V\,s\,m}$
		$= 9{,}2732 \cdot 10^{-21}\,\mathrm{erg\ Gauß}^{-1}$
Kernmagneton	μ_K	$= 0{,}6345 \cdot 10^{-32}\,\mathrm{V\,s\,m}$
		$= 5{,}0505 \cdot 10^{-24}\,\mathrm{erg\ Gauß}^{-1}$
Feinstrukturkonstante	$\frac{2\pi e^2}{hc}$	$= 1/137{,}0390$
Gravitationskonstante	G	$= 6{,}670 \cdot 10^{-8}\,\mathrm{cm}^3\,\mathrm{g}^{-1}\,\mathrm{s}^{-2}$
Zahl der Sekunden pro Tag		86400
Zahl der Sekunden pro Jahr		$3{,}1558 \cdot 10^{7}$

Anhang II.
Umrechnungstabelle für Energieeinheiten

(1 ame = 931,48 MeV)

Der Wert in den Einheiten	ist mit dem in der Tabelle angegebenen Faktor zu multiplizieren, um den Wert in den folgenden Einheiten zu erhalten: eV	MeV	erg	Ws (Joule)	cal	kcal	l atm	mkg
eV	1	10^{-6}	$1{,}6021 \cdot 10^{-12}$	$1{,}6021 \cdot 10^{-19}$	$3{,}8291 \cdot 10^{-20}$	$3{,}8291 \cdot 10^{-23}$	$1{,}5811 \cdot 10^{-21}$	$1{,}6337 \cdot 10^{-20}$
MeV	10^{6}	1	$1{,}6021 \cdot 10^{-6}$	$1{,}6021 \cdot 10^{-13}$	$3{,}8291 \cdot 10^{-14}$	$3{,}8291 \cdot 10^{-17}$	$1{,}5811 \cdot 10^{-15}$	$1{,}6337 \cdot 10^{-14}$
erg	$0{,}62418 \cdot 10^{12}$	$0{,}62418 \cdot 10^{6}$	1	10^{-7}	$2{,}390 \cdot 10^{-8}$	$2{,}390 \cdot 10^{-11}$	$9{,}86895 \cdot 10^{-10}$	$10{,}19716 \cdot 10^{-9}$
Ws (Joule)	$0{,}62418 \cdot 10^{19}$	$0{,}62418 \cdot 10^{13}$	10^{7}	1	0,2390	$2{,}390 \cdot 10^{-4}$	$9{,}86895 \cdot 10^{-3}$	$10{,}19716 \cdot 10^{-2}$
cal	$2{,}6116 \cdot 10^{19}$	$2{,}6116 \cdot 10^{13}$	$4{,}1841 \cdot 10^{7}$	4,1841	1	10^{-3}	$4{,}12917 \cdot 10^{-2}$	$4{,}26649 \cdot 10^{-1}$
kcal	$2{,}6116 \cdot 10^{22}$	$2{,}6116 \cdot 10^{16}$	$4{,}1841 \cdot 10^{10}$	$4{,}1841 \cdot 10^{3}$	10^{3}	1	41,2917	426,649
l atm	$6{,}3247 \cdot 10^{20}$	$6{,}3247 \cdot 10^{14}$	$1{,}01328 \cdot 10^{9}$	101,328	24,2179	$24{,}2179 \cdot 10^{-3}$	1	10,3326
mkg	$6{,}12112 \cdot 10^{19}$	$6{,}12112 \cdot 10^{13}$	$9{,}80665 \cdot 10^{7}$	9,80665	2,34385	$2{,}34385 \cdot 10^{-3}$	$9{,}6781 \cdot 10^{-2}$	1

(z. B. 1 eV = $1{,}6021 \cdot 10^{-12}$ erg)

Anhang III.
Nuklidtabelle

Die Tabelle wurde nach der neuesten Ausgabe der „Table of Isotopes" zusammengestellt (6. Auflage, herausgegeben von C. M. LEDERER, J. M. HOLLANDER u. I. PERLMAN. John Wiley & Sons, Inc., New York 1967). Näherungsweise berechnete Werte für die Nuklidmassen sind durch *) gekennzeichnet (vgl. J. H. E. MATTAUCH, W. THIELE u. A. H. WAPSTRA: Nucl. Physics **67**, 1 (1965). Es bedeuten:

I.U. = Isomere Umwandlung
K = Elektroneneinfang
e^- = Konversionselektronen
Sp = Spontanspaltung

Werte für den Kernspin bzw. die Parität, die nicht experimentell bestimmt wurden, sind in Klammern gesetzt. In der letzten Spalte sind die Zerfallsart und die Energie der Strahlung (in MeV) angegeben, für β^-- und β^+-Zerfall die Maximalenergien.

Findet ein Zerfall mit einer Häufigkeit $< 1\%$ statt, so ist er in Klammern gesetzt. Treten mehrere Energien mit Häufigkeiten $> 1\%$ auf, so sind die drei häufigsten in der Reihenfolge ihrer Häufigkeit angegeben. Das Auftreten weiterer Energien ist durch Punkte angedeutet.

Ordnungszahl Z	Symbol	Häufigkeit	Nuklidmasse	Kernspin und Parität	Halbwertzeit $t_{1/2}$	Zerfallsart und Energie der Strahlung
0	^{1}n		1,0086652	1/2+	12 min	β^- 0,78;
1	^{1}H	99,985	1,0078252	1/2+		
	^{2}H	0,0148	2,0141022	1		
	^{3}H		3,0160497	1/2+	12,3 a	β^- 0,0186; kein γ;
2	^{3}He	$1,3 \cdot 10^{-4}$	3,0160297	1/2+		
	^{4}He	$\approx$ 100	4,0026031	0		
	^{6}He		6,01889	0+	0,8 s	β^- 3,508; kein γ;
	^{8}He		8,0340	0+	0,122 s	β^- 9,7; ...; n; γ 0,98;
3	^{6}Li	7,42	6,015125	1+		
	^{7}Li	92,58	7,016004	3/2–		
	^{8}Li		8,022487	2+	0,84 s	β^- 13; ...; α 1,6;
	^{9}Li		9,02680	(3/2–)	0,17 s	β^- 11,0; 13,5; n 0,7; ...; α; (γ);
4	^{7}Be		7,016929	(3/2)–	53 d	K; γ 0,477;
	^{8}Be		8,005308	0+	$2 \cdot 10^{-16}$ s	α 0,047;
	^{9}Be	100	9,012186	3/2–		
	^{10}Be		10,013534	0+	$2,5 \cdot 10^{6}$ a	β^- 0,555; kein γ;
	^{11}Be		11,02166	(1/2)+	13,6 s	β^- 11,5; 9,3; ...; γ 2,12; ...;
5	^{8}B		8,024609	2+	0,77 s	β^+ 14; ...; α 1,6;
	^{9}B		9,01333		$8 \cdot 10^{-19}$ s	p; α;
	^{10}B	19,6 – 19,8	10,012939	3+		
	^{11}B	80,2 – 80,4	11,009305	3/2–		
	^{12}B		12,014354	1+	20,3 ms	β^- 13,37; ...; α 0,195—3; γ 4,43; ...;
	^{13}B		13,017780		19 ms	β^- 13,44; ...; γ 3,67;
6	^{10}C		10,01681	0+	19,4 s	β^+ 1,87; ...; γ 0,717; ...;
	^{11}C		11,011432	3/2–	20,3 min	β^+ 0,96; (K); kein γ;
	^{12}C	98,892	12,000000	0+		

	^{13}C	1,108	13,003354	1/2–		
	^{14}C		14,0032419	0+	5730 a	β^- 0,156; kein γ;
	^{15}C		15,010599	1/2+	2,4 s	β^- 4,51; 9,82; γ 5,299;
	^{16}C		16,01470	0+	0,74 s	β^-; n;
7	^{12}N		12,01864	1+	11 ms	β^+ 16,4; α 0,195—3; γ 4,43; ...;
	^{13}N		13,005738	1/2–	10,0 min	β^+ 1,20; kein γ;
	^{14}N	99,635	14,0030744	1+		
	^{15}N	0,365	15,000108	1/2–		
	^{16}N		16,006103	2–	7,2 s	β^- 4,27; 10,4; ...; γ 6,13; 7,11; ...; (α);
	^{17}N		17,00845	(1/2)–	4,16 s	β^- 4,1; ...; n 1,21; 0,40; γ 0,87; ...;
8	^{14}O		14,008597	0+	71 s	β^+ 1,811; ...; γ 2,312;
	^{15}O		15,003070	1/2–	2,1 min	β^+ 1,74; kein γ;
	^{16}O	99,759	15,9949149	0+		
	^{17}O	0,037	16,999133	5/2+		
	^{18}O	0,204	17,9991600	0+		
	^{19}O		19,003578	5/2+	29 s	β^- 3,25; 4,60; γ 0,197; 1,37; ...;
	^{20}O		20,00408	0+	14 s	β^- 2,75; γ 1,06;
9	^{17}F		17,002096	5/2+	66 s	β^+ 1,74; kein γ;
	^{18}F		18,000937	1+	109,7 min	β^+ 0,635; K; kein γ;
	^{19}F	100	18,998405	1/2+		
	^{20}F		19,999987	2+	11,4 s	β^- 5,41; γ 1,63;
	^{21}F		20,99995	5/2+	4,4 s	β^- 4,0; 5,4; γ 0,350; 1,38;
	^{22}F		22,0043	(3+)	4 s	β^- 11; ...; γ 1,28; 2,06;
10	^{18}Ne		18,005711	0+	1,5 s	β^+ 3,42; 2,38; γ 1,04;
	^{19}Ne		19,001880	1/2+	17,5 s	β^+ 2,22; kein γ;
	^{20}Ne	90,92	19,992440	0+		
	^{21}Ne	0,257	20,993849	3/2+		
	^{22}Ne	8,82	21,991385	0+		

Ordnungs-zahl Z	Symbol	Häufigkeit	Nuklidmasse	Kernspin und Parität	Halbwert-zeit $t_{1/2}$	Zerfallsart und Energie der Strahlung
	^{23}Ne		22,994473	(5/2+)	37,6 s	β^- 4,38; 3,95; ...; γ 0,439; ...;
	^{24}Ne		23,99361	0+	3,38 min	β^- 1,99; 1,10; γ 0,88;
11	^{20}Na		20,0075	(2+)	0,39 s	β^+ 11,4; ...; (γ); α 2,14; 4,44; ...;
	^{21}Na		20,99765	3/2+	23 s	β^+ 2,52; ...; γ 0,350;
	^{22}Na		21,994437	3+	2,60 a	β^+ 0,54; ...; K; γ 1,28;
	^{23}Na	100	22,989771	3/2+		
	^{24}Na		23,990963	4+	15,0 h	β^- 1,389; ...; γ 2,754; 1,369; ...;
	^{24m}Na		23,991471	1+	20 ms	I.U. 0,472; γ; β^- 6;
	^{25}Na		24,98995	5/2+	60 s	β^- 3,83; 2,82; ...; γ 0,98; 0,58; 0,39; ...;
	^{26}Na		25,9917	2, 3+	1,0 s	β^- 6,7; ...; γ 1,82; ...;
12	^{23}Mg		22,99412	3/2+	12,1 s	β^+ 3,03; ...; γ 0,44;
	^{24}Mg	78,60	23,985042	0+		
	^{25}Mg	10,11	24,985840	5/2+		
	^{26}Mg	11,29	25,982593	0+		
	^{27}Mg		26,984345	1/2+	9,5 min	β^- 1,75; 1,59; γ 0,84; 1,013; ...;
	^{28}Mg		27,98388	0+	21 h	β^- 0,46; γ 0,031; 1,35; 0,40; ...; e^-;
13	^{24}Al		23,9999	(4+)	2,1 s	β^+ 8,5; ...; γ 1,368; 2,754; 4,2; ...; (α);
	^{25}Al		24,99041	5/2+	7,2 s	β^+ 3,24;
	^{26}Al		25,986891	5+	$7{,}4 \cdot 10^5$ a	β^+ 1,17; ...; K; γ 1,81; 1,12; ...;
	^{26m}Al		25,987137	0+	6,4 s	β^+ 3,21; keine I.U.;
	^{27}Al	100	26,981539	5/2+		
	^{28}Al		27,981905	3+	2,31 min	β^- 2,85; γ 1,780;
	^{29}Al		28,98044	5/2+	6,6 min	β^- 2,40; 1,4; γ 1,28; 2,43;
	^{30}Al		29,9816	2, 3+	3,3 s	β^- 5,0; ...; γ 2,23; 3,51; ...;
14	^{26}Si		25,99234	0+	2,1 s	β^+ 3,83; 3,0; γ 0,82;
	^{27}Si		26,986703	5/2+	4,2 s	β^+ 3,85;
	^{28}Si	92,18	27,976929	0+		
	^{29}Si	4,71	28,976496	1/2+		

Z	Nuklid	Häufigkeit	Masse	Spin	Halbwertszeit	Zerfall
	^{30}Si	3,12	29,973763	0+		
	^{31}Si		30,97535	3/2+	2,62 h	β^- 1,48; . . . ; (γ);
	^{32}Si		31,97415	0+	$\lesssim$ 650 a	β^- 0,21; kein γ;
15	^{28}P		27,9918	2, 3+	0,28 s	β^+ 11,0; . . . ; γ 1,780; 4,44; . . . ;
	^{29}P		28,98181	1/2+	4,4 s	β^+ 3,95; . . . ; (γ);
	^{30}P		29,97832	1+	2,5 min	β^+ 3,24; . . . ; (γ);
	^{31}P	100	30,973765	1/2+		
	^{32}P		31,973909	1+	14,3 d	β^- 1,710; kein γ;
	^{33}P		32,971728	(1/2)+	25 d	β^- 0,248; kein γ;
	^{34}P		33,9733	1+	12,4 s	β^- 5,1; 3,2; . . . ; γ 2,13; . . . ;
16	^{30}S		29,98487	0+	1,4 s	β^+ 4,42; 5,09; γ 0,687;
	^{31}S		30,97961	1/2+	2,7 s	β^+ 4,42; . . . ; γ 1,27;
	^{32}S	95,0	31,972074	0+		
	^{33}S	0,760	32,971461	3/2+		
	^{34}S	4,22	33,967864	0+		
	^{35}S		34,969031	3/2+	88 d	β^- 0,167; kein γ;
	^{36}S	0,014	35,96708	0+		
	^{37}S		36,9710	(7/2–)	5,06 min	β^- 1,6; 4,7; γ 3,09;
	^{38}S		37,9712	0+	2,87 h	β^- 1,1; 3,0; γ 1,88;
17	^{32}Cl		31,9862	(2)+	0,31 s	β^+ 9,9; . . . ; γ 2,24; 4,77; . . . ; (α);
	^{33}Cl		32,97744	3/2+	2,5 s	β^+ 4,55; . . . ; (γ);
	^{34}Cl		33,97375	0+	1,56 s	β^+ 4,46;
	^{34m}Cl		33,97390	3+	32,0 min	β^+ 2,48; 1,3; γ 2,12; 1,17; 3,30; I.U. 0,145; γ; e^-;
	^{35}Cl	75,53	34,968851	3/2+		
	^{36}Cl		35,968309	2+	$3,1 \cdot 10^5$ a	β^- 0,714; K; (β^+); kein γ;
	^{37}Cl	24,47	36,965898	3/2+		
	^{38}Cl		37,96800	2–	37,3 min	β^- 4,91; 1,11; 2,77; γ 2,170; 1,60; . . . ;
	^{38m}Cl		37,96872	5–	0,74 s	I.U. 0,66; γ; e^-;

Ordnungs-zahl Z	Symbol	Häufigkeit	Nuklidmasse	Kernspin und Parität	Halbwert-zeit $t_{1/2}$	Zerfallsart und Energie der Strahlung
	^{39}Cl		38,96801	(3/2+)	55,5 min	β^- 1,91; 2,18; 3,45; γ 1,27; 0,246; 1,52;
	^{40}Cl		39,9704		1,4 min	β^- $\lesssim$ 3,2; 7,5; ...; γ 1,46; 2,83; ...;
18	^{35}Ar		34,97525	3/2+	1,83 s	β^+ 4,94; ...; γ 1,22; 1,76;
	^{36}Ar	0,337	35,967544	0+		
	^{37}Ar		36,966772	3/2+	35 d	K; kein γ;
	^{38}Ar	0,063	37,962728	0+		
	^{39}Ar		38,96432	(7/2–)	269 a	β^- 0,565; kein γ;
	^{40}Ar	99,600	39,962384	0+		
	^{41}Ar		40,964507	7/2–	1,83 h	β^- 1,198; ...; γ 1,293; ...;
	^{42}Ar		41,96305	0–	33 a	β^-;
19	^{37}K		36,97339	3/2+	1,23 s	β^+ 5,14; ...; γ 2,79;
	^{38}K		37,96909	3+	7,71 min	β^+ 2,68; ...; (K); γ 2,170;
	^{38m}K		37,96923	0+	0,95 s	β^+ 5,0; keine I.U.;
	^{39}K	93,22	38,963710	3/2+		
	^{40}K	0,0118	39,964000	4	$1{,}26 \cdot 10^9$ a	β^- 1,314; K; (β^+); γ 1,460;
	^{41}K	6,77	40,961832	3/2+		
	^{42}K		41,96240	2–	12,4 h	β^- 3,52; 1,97; ...; γ 1,524; ...;
	^{43}K		42,96073	3/2+	22,4 h	β^- 0,83; 0,46; ...; γ 0,619; 0,373; 0,59; ...;
	^{44}K		43,9610	(2–)	22 min	β^- 5,2; 2; 4; ...; γ 1,156; 2,1; ...;
	^{45}K		44,9607		16 min	β^- 2,1; 1,1; 4,0; γ 0,175; 1,71; ...;
20	^{38}Ca		37,9767*)	0+	0,66 s	β^+; γ 3,5;
	^{39}Ca		38,97069	3/2–	0,87 s	β^+ 5,49;
	^{40}Ca	96,97	39,962589	0+		
	^{41}Ca		40,96228	7/2–	$8 \cdot 10^4$ a	K;
	^{42}Ca	0,64	41,958625	0+		
	^{43}Ca	0,145	42,958779	7/2–		
	^{44}Ca	2,06	43,955490	0+		
	^{45}Ca		44,956189	(7/2–)	165 d	β^- 0,252; (γ);
	^{46}Ca	0,0033	45,95369	0+		

	^{47}Ca		46,95454	7/2–	4,53 d	β^- 0,67; 1,98; γ 1,308; 0,49; 0,815;
	^{48}Ca	0,185	47,95253	0+		
	^{49}Ca		48,95567	(3/2)–	8,8 min	β^- 1,95; 0,9; ...; γ 3,10; 4,1; ...;
	^{50}Ca		49,9560	0+	9 s	β^-; γ 0,072;
21	^{40}Sc		39,9782	(4)–	0,179 s	β^+ 9,1; γ 3,75;
	^{41}Sc		40,96926	7/2–	0,60 s	β^+ 5,47;
	^{42}Sc		41,96553	0+	0,68 s	β^+ 5,41;
	^{42m}Sc		41,96610	7, 6+	61 s	β^+ 2,82; γ 1,22; 1,52; 0,438;
	^{43}Sc		42,96117	7/2–	3,92 h	β^+ 1,20; 0,82; ...; K; γ 0,375;
	^{44}Sc		43,95941	2+	3,92 h	β^+ 1,47; ...; K; γ 1,159; ...;
	^{44m}Sc		43,95970	6(+)	2,44 d	I.U. 0,271; γ; e^-; K; γ 1,14; 1,02;
	^{45}Sc	100	44,955919	7/2–		
	^{46}Sc		45,955173	4+	83,9 d	β^- 0,357; ...; γ 1,12; 0,889;
	^{46m}Sc		45,955325	7(+)	20 s	I.U. 0,142; γ; e^-;
	^{47}Sc		46,952413	7/2–	3,43 d	β^- 0,439; 0,600; γ 0,160;
	^{48}Sc		47,95222	6+	1,83 d	β^- 0,65; 0,47; γ 0,983; 1,040; 1,314; ...;
	^{49}Sc		48,95003	(7/2)–	57,5 min	β^- 2,01; ...; (γ);
	^{50}Sc		49,9517	(5+)	1,72 min	β^- 3,6; ...; γ 1,55; 1,22; 0,520;
	^{50m}Sc		49,9520	(2+)	0,35 s	I.U. 0,258; γ;
22	^{43}Ti		42,9685	7/2–	0,56 s	β^+ 5,8;
	^{44}Ti		43,95957	0+	48 a	K; γ 0,078; 0,068; e^-;
	^{45}Ti		44,958129	7/2–	3,09 h	β^+ 1,04; ...; K; (γ);
	^{45m}Ti			(3/2+)	5,8 ms	I.U. 0,28; γ;
	^{46}Ti	7,99	45,952632	0+		
	^{47}Ti	7,32	46,951768	5/2–		
	^{48}Ti	73,99	47,947950	0+		
	^{49}Ti	5,46	48,947870	7/2–		
	^{50}Ti	5,25	49,944786	0+		
	^{51}Ti		50,94660	3/2–	5,8 min	β^- 2,14; 1,50; γ 0,320; 0,928; ...;

Ordnungs-zahl Z	Symbol	Häufigkeit	Nuklidmasse	Kernspin und Parität	Halbwert-zeit $t_{1/2}$	Zerfallsart und Energie der Strahlung
23	^{46}V		45,960204	0+	0,426 s	β^+ 6,03;
	^{47}V		46,95490	(3/2)–	33 min	β^+ 1,89; ...; K; (γ);
	^{48}V		47,952259	4+	16,0 d	β^+ 0,696; ...; K; γ 0,983; 1,312; ...;
	^{49}V		48,948523	7/2–	330 d	K; kein γ;
	^{50}V	0,25	49,947164	6+	$6 \cdot 10^{15}$ a	K; β^-; γ 1,55; 0,783;
	^{51}V	99,75	50,943961	7/2–		
	^{52}V		51,94478	3+	3,76 min	β^- 2,47; ...; γ 1,434; ...;
	^{53}V		52,94439	(7/2–)	2,0 min	β^- 2,50; γ 1,00;
	^{54}V		53,9467*)		55 s	β^- 3,3; γ 0,84; 0,99; 2,21; e^-;
24	^{48}Cr		47,9537	0+	23 h	K; γ 0,31; 0,116; e^-;
	^{49}Cr		48,95127	(5/2)–	41,9 min	β^+ 1,54; 1,39; ...; K; γ 0,091; 0,153; 0,063; e^-;
	^{50}Cr	4,31	49,946055	0+		
	^{51}Cr		50,944768	7/2–	27,8 d	K; γ 0,320; e^-;
	^{52}Cr	83,76	51,940513	0+		
	^{53}Cr	9,55	52,940652	3/2–		
	^{54}Cr	2,38	53,938881	0+		
	^{55}Cr		54,94083	3/2–	3,5 min	β^- 2,59; kein γ;
	^{56}Cr		55,9406	0+	5,9 min	β^- 1,5; γ 0,026; 0,083; e^-;
25	^{50}Mn				2 min	β^+; (K); γ 0,783; 1,11; ...;
	^{50m}Mn		49,954247	(+0)	0,286 s	β^+ 6,61;
	^{51}Mn		50,94819	(5/2, 7/2)–	45 min	β^+ 2,17; K; (γ);
	^{52}Mn		51,94557	6+	5,7 d	K; β^+ 0,575; ...; γ 0,744; 0,935; 1,434;
	^{52m}Mn		51,94598	2+	21 min	β^+ 2,63; K; γ 1,434; I.U. 0,383; γ;
	^{53}Mn		52,94129	7/2–	$2 \cdot 10^6$ a	K; kein γ;
	^{54}Mn		53,94036	3+	303 d	K; γ 0,835; e^-;
	^{55}Mn	100	54,938050	5/2–		
	^{56}Mn		55,938910	3+	2,576 h	β^- 2,85; 1,03; 0,72; ...; γ 0,847; 1,811; 2,110; ...;

Z	Nuklid	Häufigkeit	Masse	Spin	Halbwertszeit	Zerfall
	^{57}Mn		56,9383	(5/2–)	1,7 min	β^- 2,55; 1,1; γ 0,122; 0,136; ...;
	^{58}Mn		57,9403*)		1,1 min	β^-; γ 0,36—2,8;
26	^{52}Fe		51,94811	0+	8,2 h	β^+ 0,80; K; γ 0,165;
	^{53}Fe		52,94557	(7/2)–	8,5 min	β^+ 3,0; 2,4; ...; K; γ 0,38;
	^{54}Fe	5,84	53,93962	0+		
	^{55}Fe		54,938299	3/2–	2,6 a	K; kein γ;
	^{56}Fe	91,68	55,934937	0+		
	^{57}Fe	2,17	56,935398	1/2–		
	^{58}Fe	0,31	57,93328	0+		
	^{59}Fe		58,93488	3/2–	45 d	β^- 0,475; 0,273; ...; γ 1,095; 1,292; ...;
	^{60}Fe		59,93397	0+	$3 \cdot 10^5$ a	β^- 0,14;
	^{61}Fe		60,9365*)		6,0 min	β^- 2,8; γ 0,30; 1,03; 1,20; ...;
27	^{54}Co				1,5 min	β^+ 4,3; γ 0,41; 1,14; 1,41;
	^{54m}Co		53,94848	(0+)	0,194 s	β^+ 7,23;
	^{55}Co		54,94202	7/2–	18,2 h	β^+ 1,50; 1,04; ...; K; γ 0,930; 1,41; 0,480; ...;
	^{56}Co		55,93984	4+	77 d	K; β^+ 1,49; 0,44; γ 0,847; 1,24; 1,75; ...;
	^{57}Co		56,93630	7/2–	270 d	K; kein β^+; γ 0,122; 0,014; 0,136; ...; e^-;
	^{58}Co		57,93576	2+	71,3 d	K; β^+ 0,474; γ 0,810; ...;
	^{58m}Co		57,93579	5+	9 h	I.U. 0,025; e^-;
	^{59}Co	100	58,933189	7/2–		
	^{60}Co		59,93381	5+	5,26 a	β^- 0,314; ...; γ 1,173; 1,332; ...;
	^{60m}Co		59,93388	2+	10,5 min	I.U. 0,059; γ (2,1%); e^-; (β^-); (γ);
	^{61}Co		60,93244	(7/2)–	99 min	β^- 1,22; γ 0,067; e^-;
	^{62}Co		61,93395	(5)	13,9 min	β^- 2,88; 0,88; γ 1,17; 1,47; 1,74; ...;
	^{62}Co				1,6 min	β^-; γ;
	^{63}Co		62,9335	(–)	52 s	β^- 3,6; kein γ;
28	^{56}Ni		55,94212	0+	6,10 d	K; kein β^+; γ 0,163; 0,812; 0,748; ...; e^-;
	^{57}Ni		56,93977	3/2–	36 h	K; β^+ 0,85; 0,72; ...; γ 1,37; 0,127; 1,89;

Ordnungs-zahl Z	Symbol	Häufigkeit	Nuklidmasse	Kernspin und Parität	Halbwert-zeit $t_{1/2}$	Zerfallsart und Energie der Strahlung
	^{58}Ni	67,76	57,935 34	0+		
	^{59}Ni		58,934 342	3/2–	$8 \cdot 10^4$ a	K; kein β^+; kein γ;
	^{60}Ni	26,16	59,930 78	0+		
	^{61}Ni	1,25	60,931 06	3/2–		
	^{62}Ni	3,66	61,928 34	0+		
	^{63}Ni		62,929 66	(1/2–)	92 a	β^- 0,067; kein γ;
	^{64}Ni	1,16	63,927 95	0+		
	^{65}Ni		64,930 07	5/2–	2,56 h	β^- 2,13; 0,65; 1,02; γ 1,481; 1,115; 0,368; ...;
	^{66}Ni		65,929 09	0+	55 h	β^- 0,20; kein γ;
	^{67}Ni		66,932 2	(–)	50 s	β^- 4,1; 3,2; 2; γ 0,90; 0,89; 1,26;
29	^{58}Cu		57,944 54		3,20 s	β^+ 8,2;
	^{59}Cu		58,939 49	(3/2)–	81 s	β^+ 3,7; ...; (K); γ 1,305; 0,872; ...;
	^{60}Cu		59,937 36	2+	24 min	β^+ 2,00; 3,00; 3,92; ...; K; γ 1,332; 1,76; 0,85; ...;
	^{61}Cu		60,933 46	3/2–	3,32 h	β^+ 1,22; 0,94; ...; K; γ 0,284; 0,66; 1,19; ...; e^-;
	^{62}Cu		61,932 57	1+	9,8 min	β^+ 2,91; K; (γ);
	^{63}Cu	69,1	62,929 59	3/2–		
	^{64}Cu		63,929 76	1+	12,8 h	K; β^+ 0,656; β^- 0,573; (γ); e^-;
	^{65}Cu	30,9	64,927 78	3/2–		
	^{66}Cu		65,928 87	1+	5,1 min	β^- 2,63; 1,5; ...; γ 1,039; ...;
	^{67}Cu		66,927 76	(3/2–)	59 h	β^- 0,395; 0,484; 0,57; ...; γ 0,184; 0,092; ...; e^-;
	^{68}Cu		67,929 8	(2)+	30 s	β^- 3,5; 2,7; 2,3; γ 1,078; 0,80; 1,88; ...;
30	^{60}Zn			0+	2,1 min	β^+; K;
	^{61}Zn		60,939 2	(3/2)–	1,48 min	β^+ 4,4; 3,9; ...; (K); γ 0,48; 1,64; 0,98; ...;
	^{62}Zn		61,934 38	0+	9,3 h	K; β^+ 0,66; γ 0,59; 0,042; 0,51; ...; e^-;
	^{63}Zn		62,933 21	3/2–	38,4 min	β^+ 2,34; 1,67; 1,38; ...; K; γ 0,669; 0,962; ...;
	^{64}Zn	48,89	63,929 145	0+		

Z	Nuklid	Häufigkeit	Masse	Spin	Halbwertszeit	Zerfall
	^{65}Zn		64,92923	5/2–	245 d	K; β^+ 0,327; γ 1,115; e^-;
	^{66}Zn	27,81	65,92605	0+		
	^{67}Zn	4,11	66,92715	5/2–		
	^{68}Zn	18,56	67,92486	0+		
	^{69}Zn		68,92654	1/2–	57 min	β^- 0,90; kein γ;
	^{69m}Zn		68,92701	9/2+	13,8 h	I.U. 0,439; γ (95%); e^-;
	^{70}Zn	0,62	69,92533	0+		
	^{71}Zn		70,9275	(1/2–)	2,4 min	β^- 2,61; 2,1; ...; γ 0,51; ...;
	^{71m}Zn		70,9279	(9/2+)	4,0 h	β^- 1,46; γ 0,385; 0,495; 0,609; ...;
	^{72}Zn		71,92684	0+	46,5 h	β^- 0,30; 0,25; γ 0,145; 0,192; 0,015; ...; e^-;
31	^{63}Ga		62,9388*)		33 s	β^+; K;
	^{64}Ga		63,93674	0+	2,6 min	β^+ 2,8; 6,05; K; γ 0,992; 3,32; 0,80; ...;
	^{65}Ga		64,93273		15,2 min	β^+ 2,11; 0,82; 2,24; K; γ 0,115; 0,061; 0,152; ...; e^-;
	^{66}Ga		65,93160	0+	9,4 h	β^+ 4,153; ...; K; γ 1,039; 2,748; ...;
	^{67}Ga		66,92822	3/2–	78 h	K; kein β^+; γ 0,093; 0,184; 0,296; ...; e^-;
	^{68}Ga		67,92800	1+	68,3 min	β^+ 1,90; ...; K; γ 1,078; ...;
	^{69}Ga	60,2	68,925574	3/2–		
	^{70}Ga		69,92603	1+	21,1 min	β^- 1,65; ...; (γ);
	^{71}Ga	39,8	70,92471	3/2–		
	^{72}Ga		71,92638	3–	14,10 h	β^- 0,96; 0,64; ...; γ 0,834; 2,201; 0,630; ...;
	^{73}Ga		72,9251		4,9 h	β^- 1,19; 0,4; γ 0,295; 0,74; ...; e^-;
	^{74}Ga		73,9272		7,9 min	β^- 2,5; ...; γ 0,60; 2,35; ...;
	^{75}Ga		74,9265		2 min	β^- 3,3; ...; γ 0,58; ...;
	^{76}Ga				32 s	β^- 6; γ 0,563; 0,96; 1,12;
32	^{65}Ge		64,9396		1,5 min	β^+ 3,7; ...; K; γ 0,67; 1,72;
	^{66}Ge		65,9348	0+	2,4 h	β^+ 1,3; 2,0; ...; K; γ 0,38; 0,046; 0,185; ...;
	^{67}Ge		66,9329		19 min	β^+ 3,1; 2,3; ...; K; γ 0,170; ...;
	^{68}Ge		67,9285	0+	275 d	K; kein β^+; kein γ;
	^{69}Ge		68,92796		38 h	K; β^+ 1,22; ...; γ 1,107; 0,573; 0,872; ...;

Ordnungszahl Z	Symbol	Häufigkeit	Nuklidmasse	Kernspin und Parität	Halbwertzeit $t_{1/2}$	Zerfallsart und Energie der Strahlung
	^{70}Ge	20,55	69,92425	0+		
	^{71}Ge		70,92496	1/2–	11,4 d	K; kein β^+; kein γ;
	^{72}Ge	27,37	71,922082	0+		
	^{73}Ge	7,67	72,923463	9/2+		
	^{73m}Ge		72,923534	1/2–	0,53 s	I.U. 0,054; 0,014; γ; e^-;
	^{74}Ge	36,74	73,921180	0+		
	^{75}Ge		74,92288	(1/2–)	82 min	β^- 1,19; 0,92; ...; γ 0,265; 0,199; ...;
	^{75m}Ge		74,92303	(7/2+)	48 s	I.U. 0,139; γ (34%); e^-;
	^{76}Ge	7,67	75, 921405	0+		
	^{77}Ge		76,9236	(7/2+)	1,3 h	β^- 2,2; 1,38; 0,71; ...; γ 0,21; 0,263; 0,417; ...; e^-;
	^{77m}Ge		76,9238	(1/2–)	54 s	β^- 2,9; 2,7; γ 0,215; I.U. 0,159; γ; e^-;
	^{78}Ge		77,9229	0+	1,47 h	β^- 0,71; ...; γ 0,277; ...;
33	^{69}As		68,9322		15 min	β^+ 2,9; K; γ 0,23;
	^{70}As		69,93095		52 min	β^+ 2,14; 1,44; K; γ 1,040; 0,67; ...;
	^{71}As		70,92711	(5/2–)	62 h	K; β^+ 0,81; ...; γ 0,175; ...; e^-;
	^{72}As		71,92676	2–	26 h	β^+ 2,50; 3,34; ...; K; γ 0,835; 0,630; ...; e^-;
	^{73}As		72,92386	3/2–	80,3 d	K; kein β^+;
	^{74}As		73,923933	2–	17,9 d	K; β^+ 0,95; 1,54; β^- 1,36; 0,72; γ 0,596; 0,635; ...;
	^{74m}As		73,924237	(5)	8,0 s	I.U. 0,283; γ;
	^{75}As	100	74,921596	3/2–		
	^{76}As		75,92240	2–	26,5 h	β^- 2,97; 2,41; ...; γ 0,559; 0,657; 1,22;
	^{77}As		76,92064	3/2–	38,7 h	β^- 0,68; ...; γ 0,239; ...;
	^{78}As		77,9219	(2–)	91 min	β^- 4,1; ...; γ 0,614; 0,70; 1,31; ...;
	^{79}As		78,9209	(3/2–)	9,0 min	β^- 2,15; ...; γ 0,36; 0,43; 0,89; ...;
	^{80}As		79,9230	1(+)	15,3 s	β^- 6,0; 5,4; ...; γ 0,666; 1,64; 1,22;
	^{81}As		80,9221	(3/2–)	33 s	β^- 3,8; kein γ;

	^{72}Se		71,9270*⁾	0+	8,4 d	K; kein β^+; γ 0,046; e^-;
	^{73}Se		72,9268	(9/2+)	7,1 h	β^+ 1,30; ...; K; γ 0,359; 0,066; e^-;
	^{73m}Se		72,9268	(1/2–)	42 min	β^+ 1,7; ...; K; γ 0,251; 0,088; 0,58;
	^{74}Se	0,87	73,92248	0+		
	^{75}Se		74,922525	5/2+	120,4 d	K; kein β^+; γ 0,265; 0,136; 0,280; ...; e^-;
	^{76}Se	9,02	75,91920	0+		
	^{77}Se	7,58	76,91991	1/2–		
	^{77m}Se		76,92008	7/2+	17,5 s	I.U. 0,161; γ (50%); e^-;
	^{78}Se	23,52	77,917313	0+		
	^{79}Se		78,918494	7/2+	$6,5 \cdot 10^4$ a	β^- 0,16; kein γ; I.U. 0,096; e^-;
	^{79m}Se		78,918597	1/2–	3,9 min	I.U. 0,096; γ (9%); e^-;
	^{80}Se	49,82	79,916527	0		
	^{81}Se		80,91798	1/2–	18,6 min	β^- 1,58; ...; (γ);
	^{81m}Se		80,91810	7/2+	57 min	I.U. 0,103; γ (8%); e^-;
	^{82}Se	9,19	81,91671	0+		
	^{83}Se		82,9191	9/2+	25 min	β^- 1,8; 1,0; ...; γ 0,36; 0,22; ...;
	^{83m}Se		82,9193	(1/2–)	70 s	β^- 3,8; 1,7; γ 1,01; 2,02; 0,65; ...;
	^{84}Se			0+	3,3 min	β^-;
	^{85}Se				39 s	β^-;
	^{87}Se				16 s	β^-;
35	^{74}Br		73,9298		36 min	β^+ 4,7; K; γ 0,64;
	^{75}Br		74,92545		1,7 h	β^+ 1,70; ...; K; γ 0,285; 0,62;
	^{76}Br		75,9242	1	16,1 h	β^+ 3,6; 3,1; ...; K; γ 0,559; 0,65; 1,21;
	^{77}Br		76,92137	3/2–	57 h	K; β^+ 0,34; γ 0,52; 0,24; 0,58; ...; e^-;
	^{77m}Br		76,92149	(9/2+)	4,2 min	I.U. 0,108; γ; e^-;
	^{78}Br		77,92115	1+	6,5 min	β^+ 2,55; 1,93; K; γ 0,614;
	^{79}Br	50,52	78,918329	3/2–		
	^{79m}Br		78,91855		4,8 s	I.U. 0,21; γ;
	^{80}Br		79,918536	1+	17,6 min	β^- 2,00; 1,38; ...; K; β^+ 0,87; γ 0,618; ...;
	^{80m}Br		79,91862	5–	4,38 h	I.U. 0,037; 0,049; γ; e^-;
	^{81}Br	49,48	80,91629	3/2–		
	^{82}Br		81,91680	5–	35,34 h	β^- 0,444; γ 0,777; 0,554; 0,619; ...;

Ordnungs-zahl Z	Symbol	Häufigkeit	Nuklidmasse	Kernspin und Parität	Halbwert-zeit $t_{1/2}$	Zerfallsart und Energie der Strahlung
	^{82m}Br		81,91685	2–	6,1 min	I.U. 0,046; (γ); e^-; (β^-); (γ);
	^{83}Br		82,91517	(3/2–)	2,41 h	β^- 0,93; ...; γ 0,530;
	^{84}Br		83,91655		31,8 min	β^- 4,68; 2,8; 3,8; ...; γ 0,88; 1,90; ...;
	^{84m}Br				6,0 min	β^- 1,9; 0,8; ...; γ 0,88; 1,46; 0,44; ...;
	^{85}Br		84,9155	(3/2–)	3,0 min	β^- 2,5; kein γ;
	^{86}Br		85,9184*)		54 s	β^- 7,1; ...; γ 1,56; 1,36;
	^{87}Br		86,9199		55 s	β^- 2,6; 8,0; n 0,3; γ 1,44; ...;
	^{88}Br				16 s	β^-; n; γ 0,76;
	^{89}Br				4,5 s	β^-; n 0,5;
	^{90}Br				1,6 s	β^-; n;
36	^{74}Kr		73,9333	0+	20 min	β^+ 3,1; K;
	^{75}Kr		74,9309*)		5 min	β^+; K;
	^{76}Kr		75,9255*)	0+	14,8 h	K; γ 0,039—0,45;
	^{77}Kr		79,9244	(5/2–)	1,19 h	β^+ 1,86; 1,67; ...; K; γ 0,131; 0,149; ...; e^-;
	^{78}Kr	0,354	77,92040	0+		
	^{79}Kr		78,92006	1/2–	34,9 h	K; β^+ 0,60; ...; γ 0,398; 0,261; ...; e^-;
	^{79m}Kr		78,92020	(7/2+)	55 s	I.U. 0,127; γ; e^-;
	^{80}Kr	2,27	79,91638	0+		
	^{81}Kr		80,9166	(7/2+)	$2,1 \cdot 10^5$ a	K;
	^{81m}Kr		80,9168	(1/2–)	13 s	I.U. 0,190; γ (65%); e^-;
	^{82}Kr	11,56	81,91348	0+		
	^{83}Kr	11,55	82,91413	9/2+		
	^{83m}Kr		82,91418	1/2–	1,86 h	I.U. 0,03; 0,009; γ; e^-;
	^{84}Kr	56,90	83,911503	0+		
	^{85}Kr		84,91252	9/2+	10,76 a	β^- 0,67; ...; (γ);
	^{85m}Kr		84,91285	1/2–	4,4 h	β^- 0,82; γ 0,150; I.U. 0,305; γ; e^-;
	^{86}Kr	17,37	85,910616	0+		
	^{87}Kr		86,91336	(5/2+)	76 min	β^- 3,8; 1,3; ...; γ 0,403; 2,57; 0,85; ...;
	^{88}Kr		87,9142	0+	2,80 h	β^- 0,52; 2,8; ...; γ 0,191; 2,40; 0,85; ...; e^-;
	^{89}Kr		88,9166		3,2 min	β^- 4,0; ...; γ 0,23; 0,43; 0,60; ...;

	^{90}Kr		89,9197	0+	33 s	β^- 2,80; ...; γ 0,120; 1,11; 1,54;
	^{91}Kr				10 s	β^- 3,6;
	^{92}Kr			0+	3,0 s	β^-;
	^{93}Kr				2,0 s	β^-;
	^{94}Kr			0+	1,4 s	β^-;
37	^{79}Rb			(3/2–)	24 min	β^+; K; γ 0,15; 0,19;
	^{80}Rb		79,9219	1+	34 s	β^+ 4,1; 3,5; K; γ 0,618;
	^{81}Rb		80,9190	3/2–	4,7 h	K; β^+ 1,03; 0,58; ...; γ 1,10; 0,45; ...;
	^{81m}Rb		80,9192	9/2+	31 min	β^+ 1,4; K; I.U. 0,085; γ; e^-;
	^{82}Rb		81,91796	1+	1,3 min	β^+ 3,15; ...; K; γ 0,777; ...;
	^{82m}Rb		81,91826	5–	6,3 h	K; β^+ 0,78; γ 0,777; 0,554; 0,619; ...;
	^{83}Rb		82,9147*)	5/2–	83 d	K; kein β^+; γ 0,53; ...; e^-;
	^{84}Rb		83,91438	2–	33,0 d	K; β^+ 0,78; 1,66; β^- 0,91; γ 0,88; ...;
	^{84m}Rb		83,91488	6+	20 min	I.U. 0,216; 0,250; 0,464; γ; e^-; K; kein β^+; γ 0,89;
	^{85}Rb	72,15	84,91180	5/2–		
	^{86}Rb		85,91119	2–	18,66 d	β^- 1,78; 0,71; γ 1,078;
	^{86m}Rb		85,91180		1,0 min	I.U. 0,56; γ;
	^{87}Rb	27,85	86,909186	3/2–	$5 \cdot 10^{10}$ a	β^- 0,274; kein γ;
	^{88}Rb		87,9113	2–	17,8 min	β^- 5,3; 3,6; 2,5; γ 1,836; 0,898; ...;
	^{89}Rb		88,9116		15,4 min	β^- 3,92; 2,9; ...; γ 1,05; 1,26; ...;
	^{90}Rb		89,9148	2–	2,9 min	β^- 1,3—6,6; γ 0,53—5,2;
	^{91}Rb				14 min	β^-;
	^{91}Rb		90,9160*)		1,2 min	β^- 4,6;
	^{92}Rb		91,9192*)		5,3 s	β^-;
	^{93}Rb				5,6 s	β^-;
	^{94}Rb				2,9 s	β^-;
	^{95}Rb				< 2,5 s	β^-;
38	^{80}Sr			0+	1,7 h	K; γ 0,58;
	^{81}Sr				29 min	K; β^+;
	^{82}Sr		81,9184*)	0+	25 d	K; kein β^+;

Ordnungszahl Z	Symbol	Häufigkeit	Nuklidmasse	Kernspin und Parität	Halbwertzeit $t_{1/2}$	Zerfallsart und Energie der Strahlung
	^{83}Sr		82,9172*)	(1/2–)	32,4 h	K; β^+ 1,15; 0,81; γ 0,76; 0,38; 0,040; ...; e^-;
	^{84}Sr	0,56	83,913430	0+		
	^{85}Sr		84,91299	(9/2+)	64 d	K; kein β^+; γ 0,514; e^-;
	^{85m}Sr		84,91325	(1/2–)	70 min	I.U. 0,231; γ (85%); K; kein β^+; γ 0,150; e^-;
	^{86}Sr	9,86	85,90928	0+		
	^{87}Sr	7,02	86,90889	9/2+		
	^{87m}Sr		86,90931	1/2–	2,83 h	I.U. 0,388; γ (80%); e^-; (K);
	^{88}Sr	82,56	87,90564	0+		
	^{89}Sr		88,90744	5/2+	52 d	β^- 1,463; ...;
	^{90}Sr		89,90773	0+	28,1 a	β^- 0,546; kein γ;
	^{91}Sr		90,91016	5/2+	9,67 h	β^- 1,09; 1,36; 2,67; ...; γ 1,025; 0,748; 0,645; ...;
	^{92}Sr		91,9109	0+	2,71 h	β^- 0,55; 1,5; γ 1,37; 0,44; 0,23;
	^{93}Sr		92,9148		8 min	β^- 2,9; 2,6; 2,2; ...; γ 0,60; 0,8; 1,2; ...;
	^{94}Sr		93,9154	0+	1,3 min	β^- 2,1; γ 1,42;
	^{95}Sr				0,8 min	β^-;
39	^{82}Y				12 min	K; β^+;
	^{83}Y				7,4 min	K; β^+;
	^{84}Y		83,9202		41 min	β^+ 3,5; 2,9; ...; K; γ 0,795; 0,982; 1,041; ...;
	^{85}Y		84,91649	(9/2+)	5,0 h	β^+ 2,24; 2,1; 1,1; K; γ 0,231; 0,77; 2,16; ...; e^-;
	^{85m}Y		84,91653	(1/2+)	2,7 h	β^+ 1,54; K; γ 0,92; 0,503; ...; keine I.U.;
	^{86}Y		85,91495	4–	14,6 h	K; β^+ 1,25; 1,60; 2,34; ...; γ 1,077; 0,63; 1,16; ...;
	^{86m}Y		85,91518	8+	48 min	I.U. 0,0102; 0,2080; γ; e^-;
	^{87}Y		86,9107	(1/2–)	80 h	K; (β^+); γ 0,483;
	^{87m}Y		86,9111	(9/2+)	14 h	I.U. 0,381; γ (74%); e^-; β^+ 1,60;
	^{88}Y		87,90953	(4–)	108 d	K; (β^+); γ 1,836; 0,898; ...;
	^{89}Y	100	88,90587	1/2–		
	^{89m}Y		88,90685	9/2+	16 s	I.U. 0,91; γ (99%); e^-;

Z	Nuklid	Häufigkeit	Masse	Spin	Halbwertszeit	Zerfall
	^{90}Y		89,90715	2–	64 h	β^- 2,27; kein γ;
	^{90m}Y		89,90788	(7+)	3,1 h	I.U. 0,202; 0,482; γ (97; 91%); e$^-$; (β^-);
	^{91}Y		90,90730	1/2–	58,8 d	β^- 1,545; 0,32; (γ);
	^{91m}Y		90,90789	9/2+	50 min	I.U. 0,551; γ (95%); e$^-$;
	^{92}Y		91,90893	2–	3,53 h	β^- 3,63; 1,30; 2,6; ...; γ 0,934; 1,40; 0,448; ...;
	^{93}Y		92,90959	(1/2–)	10,2 h	β^- 2,89; 2,62; 1,97; ...; γ 0,267; 0,94; 1,9; ...;
	^{94}Y		93,9117		20,3 min	β^- 5,0; γ 0,92; 0,56; 1,90; ...;
	^{95}Y		94,9125*)		10,9 min	β^- 4,2; γ; ...;
	^{96}Y		95,9157*)		2,3 min	β^- 3,5; γ 0,7; 1,0; 1,5;
40	^{81}Zr				7—15 min	β^+; K;
	^{82}Zr			0+	10 min	β^+; K;
	^{83}Zr				5—10 min	K; β^+;
	^{84}Zr			0+	16 min	K; β^+;
	^{85}Zr				15 min	K; β^+;
	^{85}Zr				1,4 h	K; β^+;
	^{86}Zr		85,9163*)	0+	16,5 h	K; kein β^+; γ 0,243; 0,028; 0,612; e$^-$;
	^{87}Zr		86,9145		1,6 h	β^+ 2,10; K; γ 1,2; 2,2;
	^{88}Zr		87,9101*)	0+	85 d	K; kein β^+; γ 0,394; e$^-$;
	^{89}Zr		88,90891	(9/2+)	78,4 h	K; β^+ 0,90; ...; γ 1,71; ...;
	^{89m}Zr		88,90954	(1/2–)	4,18 min	I.U. 0,588; γ (87%); e$^-$; K; β^+ 0,89; 2,40; γ 1,51;
	^{90}Zr	51,46	89,90470	0+		
	^{90m}Zr		89,90719	5–	0,81 s	I.U. 2,32; 2,18; 0,133; γ; e$^-$;
	^{91}Zr	11,23	90,90564	5/2+		
	^{92}Zr	17,11	91,90503	0+		
	^{93}Zr		92,90645	5/2+	1,5 · 10^6 a	β^- 0,060; kein γ;
	^{94}Zr	17,40	93,90631	0+		
	^{95}Zr		94,90804	5/2+	65 d	β^- 0,360; 0,396; 0,89; γ 0,724; 0,756;
	^{96}Zr	2,80	95,90829	0+		
	^{97}Zr		96,91097		17,0 h	β^- 1,91; 0,46; γ 0,34; 1,15; 1,35; ...;
	^{98}Zr		97,9120*)	0+	1 min	β^-;

Ordnungszahl Z	Symbol	Häufigkeit	Nuklidmasse	Kernspin und Parität	Halbwertzeit $t_{1/2}$	Zerfallsart und Energie der Strahlung
41	^{88}Nb		87,9178*)		14 min	β^+ 3,2; γ 0,076—1,083;
	^{89}Nb		88,9131	(9/2+)	1,9 h	β^+ 2,9; K; γ 1,626; 3,577; 3,838; ...;
	^{89m}Nb		88,9139	(1/2–)	42 min	β^+ 3,1; K;
	^{90}Nb		89,9112	(8+)	14,6 h	K; β^+ 1,50; 0,86; 0,55; γ 1,14; 2,32; 0,142; ...; e⁻;
	^{90m}Nb		89,91139	(4)–	24 s	I.U. 0,122; γ (71%); e⁻;
	^{91}Nb		90,9069	(9/2+)	lang	K;
	^{91m}Nb		90,9070	(1/2–)	62 d	I.U. 0,104; (γ); e⁻; K; γ 1,21;
	^{92m}Nb		91,90733	2+	10,16 d	K; (β^+); γ 0,934; 1,82; 0,89;
	^{93}Nb	100	92,90638	9/2+		
	^{93m}Nb		92,90641	1/2–	13,6 a	I.U. 0,03; e⁻;
	^{94}Nb		93,90730	6+	$2,0 \cdot 10^4$ a	β^- 0,49; γ 0,702; 0,871;
	^{94m}Nb		93,90734	3+	6,3 min	I.U. 0,042; (γ); e⁻; (β^-); (γ);
	^{95}Nb		94,90683	(9/2+)	35 d	β^- 0,160; γ 0,765;
	^{95m}Nb		94,90708	(1/2–)	90 h	I.U. 0,235; (γ); e⁻;
	^{96}Nb		95,90806		23,4 h	β^- 0,7; 0,37; γ 0,778; 0,569; 1,092; ...;
	^{97}Nb		96,90809	(9/2+)	72 min	β^- 1,27; 0,91; γ 0,665; 1,02;
	^{97m}Nb		96,90890	(1/2–)	1,0 min	I.U. 0,747; γ (98%); e⁻;
	^{98}Nb		97,9104	(4, 5+)	51 min	β^- 3,1; ...; γ 0,787; 0,720; 1,16; ...;
	^{99}Nb		98,9111*)		2,4 min	β^- 3,2; ...; γ 0,100; 0,260;
	^{100}Nb		99,9140*)		3,0 min	β^-; γ 0,53; 0,36; 0,45; ...;
	^{100}Nb		99,9140*)		11 min	β^- 3,5; 3,1; 4,2; γ 0,535; 0,62; 1,04; ...;
	^{101}Nb				1,0 min	β^-;
42	^{88}Mo			0+	27 min	β^+ 2,5; K; γ 2,69;
	^{89}Mo				7 min	β^+ 4,9; K;
	^{90}Mo		89,91393	0+	5,7 h	K; β^+ 1,2; ...; γ 0,257; 0,945; ...; e⁻;
	^{91}Mo		90,9117	(9/2+)	15,49 min	β^+ 3,44; K; kein γ;
	^{91m}Mo		90,9124	(1/2–)	66 s	I.U. 0,658; γ (54%); e⁻; K; β^+ 2,48; 2,78; 3,99; γ 1,53; 1,21;
	^{92}Mo	15,86	91,90681	0+		
	^{93}Mo		92,90683	5/2+	> 100 a	K;

	^{93m}Mo		92,90943	(21/2+)	6,9 h	I.U. 1,479; 0,685; 0,264; γ; e^-;
	^{94}Mo	9,12	93,905090	0+		
	^{95}Mo	15,70	94,905839	5/2+		
	^{96}Mo	16,50	95,904674	0+		
	^{97}Mo	9,45	96,906021	5/2+		
	^{98}Mo	23,75	97,905409	0+		
	^{99}Mo		98,90772	1/2+	67 h	β^- 1,23; 0,45; 0,8; ...; γ 0,740; 0,181; 0,780; ...; e^-;
	^{100}Mo	9,62	99,907475	0+		
	^{101}Mo		100,91035	(1/2+)	14,6 min	β^- 0,7; 1,6; 0,8; ...; γ 0,191; 1,02; 0,59; ...; e^-;
	^{102}Mo		101,9102*)	0+	11,5 min	β^- 1,2;
	^{103}Mo				62 s	β^-;
	^{104}Mo			0+	1,3 min	β^- 4,8; γ 0,070;
	^{105}Mo				40 s	β^-;
43	^{92}Tc		91,9155	(8, 9+)	4,4 min	β^+ 4,1; K; γ 1,54; 0,79; 0,33; ...;
	^{93}Tc		92,91025	(9/2+)	2,7 h	β^+ 0,80; 0,64; K; γ 1,35; 1,49; ...;
	^{93m}Tc		92,91067	(1/2–)	44 min	I.U. 0,390; γ (63%); e^-; K; γ 2,66;
	^{94}Tc		93,90978	6, 7+	293 min	K; β^+ 0,816; γ 0,702; 0,849; 0,871; ...;
	^{94m}Tc		93,90966	2+	53 min	β^+ 2,47; 0,94; ...; K; γ 0,871; 1,53; 1,87; ...;
	^{95}Tc		94,90762	(9/2+)	20,0 h	K; kein β^+; γ 0,768; 0,84; 1,06; ...;
	^{95m}Tc		94,90766	(1/2–)	60 d	K; (β^+); γ 0,204; 0,584; 0,838; I.U. 0,0389; γ; e^-;
	^{96}Tc		95,9078		4,3 d	K; kein β^+; γ 0,778; 0,851; 0,81; ...; e^-;
	^{96m}Tc		95,9079		52 min	I.U. 0,0344; e^-; (β^+);
	^{97}Tc		96,9064*)	(9/2+)	$2,6 \cdot 10^6$ a	K;
	^{97m}Tc		94,9066	(1/2–)	90 d	I.U. 0,0965; e^-;
	^{98}Tc		97,9071	(7, 6+)	$1,5 \cdot 10^6$ a	β^- 0,30; γ 0,66; 0,76;
	^{99}Tc		98,90625	9/2+	$2,12 \cdot 10^5$ a	β^- 0,292; kein γ;
	^{99m}Tc		98,90641	1/2–	6,0 h	I.U. 0,002; 0,140; γ (90%); e^-;
	^{100}Tc		99,9078	1+	17 s	β^- 2,2; 2,88; 3,38; γ 0,540; 0,60; ...;

Ordnungs-zahl Z	Symbol	Häufigkeit	Nuklidmasse	Kernspin und Parität	Halbwert-zeit $t_{1/2}$	Zerfallsart und Energie der Strahlung
	^{101}Tc		100,907 33	(9/2+)	14,0 min	β^- 1,32; 1,07; γ 0,307; 0,545; 0,13; . . . ;
	^{102}Tc		101,909 2*)	(1)+	5 s	β^- 4,4;
	^{102m}Tc		101,908 7*)		4,5 min	β^- 2; γ 0,47;
	^{103}Tc		102,908 8		50 s	β^- 2,0; 2,2; γ 0,135; 0,21; 0,35;
	^{104}Tc		103,911 7		18 min	β^- 2,4; 3,3; 4,6; . . . ; γ 0,36—4,7;
	^{105}Tc		104,911 3		8 min	β^- 3,4; γ 0,110;
	^{106}Tc				37 s	β^-;
	^{107}Tc				29 s	β^-;
44	^{93}Ru				50 s	β^+ (?);
	^{94}Ru			0+	57 min	K;
	^{95}Ru		94,909 80	(7/2+)	1,7 h	K; β^+ 1,01; 1,33; 0,7; . . . ; γ 0,340; 1,09; 0,625; . . . ;
	^{96}Ru	5,46	95,907 59	0+		
	^{97}Ru		96,907 6*)		2,9 d	K; γ 0,215; 0,324; . . . ; e^-;
	^{98}Ru	1,87	97,905 29	0+		
	^{99}Ru	12,63	98,905 94	5/2+		
	^{100}Ru	12,53	99,904 22	0+		
	^{101}Ru	17,02	100,905 58	5/2+		
	^{102}Ru	31,6	101,904 35	0+		
	^{103}Ru		102,906 31	(5/2+)	39,6 d	β^- 0,21; 0,70; γ 0,497; 0,610; . . . ;
	^{104}Ru	18,87	103,905 43	0+		
	^{105}Ru		104,907 68	(5/2+)	4,44 h	β^- 1,15; 1,08; 1,87; . . . ; γ 0,726; 0,475; 0,67; . . . ;
	^{106}Ru		105,907 32	0+	367 d	β^- 0,039; kein γ;
	^{107}Ru		106,910 1		4,2 min	β^- 3,2; 2,1; . . . ; γ 0,195; 0,86; 0,93; . . . ;
	^{108}Ru		107,910 1	0+	4,5 min	β^- 1,3; 1,1; γ 0,165;
45	^{97}Rh		96,911 4*)		32 min	β^+ 2,47; 2,06; 1,8; K; γ 0,08—2,16;
	^{98}Rh		97,909 8		8,7 min	β^+ 2,5; K; γ 0,65;
	^{99}Rh		98,908 14		16 d	K; β^+ 1,03; . . . ; γ 0,09—0,619;
	^{99}Rh		98,908 19		4,7 h	K; β^+ 0,74; . . . ; γ 0,34; 0,62; . . . ;

	^{100}Rh		99,908 13	1, 2–	20 h	K; β^+ 2,62; 2,07; 1,26; γ 0,540; 2,37; 0,82; ...; e^-;
	^{101}Rh		100,906 18	(1/2–)	3 a	K; γ 0,127; 0,198; 0,325; ...; e^-;
	^{101m}Rh		100,906 34	(9/2+)	4,5 d	K; kein β^+; γ 0,307; 0,545; I.U. 0,157; (γ); e^-;
	^{102}Rh		101,906 84	0, 1, 2–	206 d	K; β^+ 1,29; 0,81; ...; β^- 1,15; γ 0,475; 0,628; 1,103; ...;
	^{102}Rh				2,9 a	K; γ 0,475; 0,632; 0,698; ...;
	^{103}Rh	100	102,905 51	1/2–		
	^{103m}Rh		102,905 55	7/2+	57 min	I.U. 0,040; (γ); e^-;
	^{104}Rh		103,906 66	1+	43 s	β^- 2,44; 1,9; ...; γ 0,56; ...; (K); kein β^+;
	^{104m}Rh		103,906 79	5+	4,41 min	I.U. 0,051; 0,078; 0,097; ...; γ; e^-; (β^-);
	^{105}Rh		104,905 67	(7/2+)	35,9 h	β^- 0,568; 0,249; ...; γ 0,319; 0,306; ...;
	^{105m}Rh		104,905 81		45 s	I.U. 0,129; γ; e^-;
	^{106}Rh		105,907 28	1+	30 s	β^- 3,54; 2,4; 3,1; ...; γ 0,512; 0,622; 1,05; ...;
	^{106m}Rh		105,907 35		130 min	β^- 0,79; 0,95; 1,1; ...; γ 0,512; 0,735; 0,82; ...;
	^{107}Rh		106,906 75	(5/2)+	22 min	β^- 1,20; 1,14; 0,84; ...; γ 0,305; 0,390; 0,68; ...;
	^{108}Rh		107,908 7	1+	17 s	β^- 4,5; 4,1; 3,5; γ 0,434; 0,62; 0,51; ...;
	^{110}Rh		109,911 1	1+	5 s	β^- 5,5; ...; γ 0,374;
46	^{98}Pd			0+	17 min	K; γ 0,132 (?);
	^{99}Pd		98,912 3		22 min	β^+ 2,0; ...; K; γ 0,140; 0,275; 0,420; ...;
	^{100}Pd		99,908 8*)	0+	4,1 d	K; kein β^+; γ 0,084; 0,074; 0,126; ...; e^-;
	^{101}Pd		100,908 32	(5/2+)	8,4 h	K; β^+ 0,78; 0,49; ...; γ 0,296; 0,590; 0,270; ...; e^-;
	^{102}Pd	0,96	101,905 61	0+		
	^{103}Pd		102,906 11	(5/2+)	17 d	K; (γ);
	^{104}Pd	10,97	103,904 01	0+		
	^{105}Pd	22,2	104,905 06	5/2+		
	^{106}Pd	27,3	105,903 48	0+		
	^{107}Pd		106,905 13	5/2+	$\lessapprox 7 \cdot 10^6$ a	β^- 0,04; kein γ;

Ordnungszahl Z	Symbol	Häufigkeit	Nuklidmasse	Kernspin und Parität	Halbwertzeit $t_{1/2}$	Zerfallsart und Energie der Strahlung
	^{107m}Pd		106,905 35	11/2–	22 s	I.U. 0,21; γ; e^-;
	^{108}Pd	26,7	107,903 89	0+		
	^{109}Pd		108,905 95	5/2+	13,47 h	β^- 1,028; ...; (γ); e^-;
	^{109m}Pd		108,906 16	11/2+	4,7 min	I.U. 0,188; γ (58%); e^-;
	^{110}Pd	11,8	109,905 16	0+		
	^{111}Pd		110,907 67		22 min	β^- 2,2; ...; γ 0,60; 1,40; 0,38; ...;
	^{111m}Pd		110,907 89		5,5 h	I.U. 0,17; γ; e^-; β^- 2,0; γ 0,39; 0,58; 0,65; ...;
	^{112}Pd		111,907 38	0+	21 h	β^- 0,28; γ 0,019; e^-;
	^{113}Pd				1,4 min	β^-; kein γ;
	^{114}Pd			0+	2,4 min	β^-; kein γ;
	^{115}Pd				45 s	β^-;
47	^{102}Ag		101,911 3*)		15 min	K; β^+;
	^{103}Ag		102,908 9	7/2+	66 min	K; β^+ 1,3; 1,6; γ 0,27; 0,12; 0,15; ...;
	^{103m}Ag		102,907 8	(1/2–)	5,7 s	I.U. 0,138; γ; e^-;
	^{104}Ag		103,908 60	5+	67 min	K; β^+ 0,99; ...; γ 0,556; 0,764; 0,854; ...; e^-;
	^{104m}Ag		103,908 62	2+	30 min	K; β^+ 2,70; γ 0,556; e^-;
	^{105}Ag		104,906 6*)	1/2–	40 d	K; kein β^+; γ 0,344; 0,280; 0,443; ...; e^-;
	^{106}Ag		105,906 66	1+	24,0 min	K; β^+ 1,96; 1,45; γ 0,512; 0,29—2,17; e^-;
	^{106m}Ag		105,907 0	6+	8,4 d	K; kein β^+; γ 0,512; 0,80; 0,717; ...; e^-;
	^{107}Ag	51,35	106,905 09	1/2–		
	^{107m}Ag		106,905 19	7/2+	44,3 s	I.U. 0,094; γ (5%); e^-;
	^{108}Ag		107,905 95	1+	2,3 min	β^- 1,64; ...; γ 0,632; ...; K; (β^+);
	^{108m}Ag		107,906 06	(6+)	> 5 a	K; γ 0,722; 0,614; 0,434; I.U. 0,03; 0,08; γ; e^-;
	^{109}Ag	48,65	108,904 76	1/2–		
	^{109m}Ag		108,904 85	7/2+	40 s	I.U. 0,088; γ (5%); e^-;

Z	Nuklid	Häufigkeit	Masse	Spin	Halbwertszeit	Zerfall
	^{110}Ag		109,90609	1+	24,4 s	β^- 2,87; 2,21; γ 0,658; (K);
	^{110m}Ag		109,90622	6+	253 d	β^- 0,087; 0,53; γ 0,658; 0,885; 0,937; I.U. 0,116; (γ); e^-;
	^{111}Ag		110,90532	1/2–	7,5 d	β^- 1,05; 0,70; 0,80; γ 0,342; 0,247; ...;
	^{111m}Ag		110,90539	(7/2+)	74 s	I.U. 0,065; γ; e^-;
	^{112}Ag		111,90706	2–	3,2 h	β^- 3,94; 3,35; 1,96; γ 0,617; 1,40; 2,11; ...;
	^{113}Ag		112,90656	1/2–	5,3 h	β^- 2,0; ...; γ 0,30; 0,67; 0,12; ...;
	^{113m}Ag				1,2 min	β^- $< 2,0$; γ 0,14; 0,31; 0,39; ...;
	^{114}Ag		113,9083		4,5 s	β^- 4,6; γ 0,57;
	^{114m}Ag				2 min	β^-;
	^{115}Ag		114,9090	(1/2–)	20 min	β^- 3,2; ...; γ 0,22; 0,28; 2,12; ...;
	^{115m}Ag				20 s	β^-;
	^{116}Ag		115,9113*)		2,5 min	β^- 5,0; γ 0,52; 0,70;
	^{117}Ag				1,1 min	β^-;
48	^{103}Cd				10 min	β^+; K; γ 0,22; 0,63; 0,85;
	^{104}Cd		103,9098*)	0+	57 min	K; kein β^+; γ 0,084; e^-;
	^{105}Cd		104,9095*)		55 min	K; β^+ 1,69; γ 0,03—2,32; e^-;
	^{106}Cd	1,22	105,90646	0+		
	^{107}Cd		106,90661	5/2+	6,5 h	K; (β^+); (γ);
	^{108}Cd	0,88	107,90419	0+		
	^{109}Cd		108,90494	5/2+	453 d	K; kein β^+;
	^{110}Cd	12,39	109,903012	0+		
	^{111}Cd	12,75	110,904188	1/2+		
	^{111m}Cd		110,904614	11/2–	48,6 min	I.U. 0,247; 0,150; γ (94; 30%); e^-;
	^{112}Cd	24,07	111,902762	0+		
	^{113}Cd	12,26	112,904409	1/2+		
	^{113m}Cd		112,90470	11/2–	14 a	β^- 0,58; I.U. 0,265; (γ);
	^{114}Cd	28,86	113,90336	0+		
	^{115}Cd		114,90543	1/2+	53,5 h	β^- 1,11; 0,58; 0,86; ...; γ 0,53; 0,49; 0,262; ...;
	^{115m}Cd		114,90562	11/2–	43 d	β^- 1,62; 0,68; ...; γ 0,935; ...;

Ordnungs-zahl Z	Symbol	Häufigkeit	Nuklidmasse	Kernspin und Parität	Halbwert-zeit $t_{1/2}$	Zerfallsart und Energie der Strahlung
	^{116}Cd	7,58	115,90476	0+		
	^{117}Cd		116,90724	1/2+	2,4 h	β^- 0,65; 1,79; 2,23; ...; γ 0,273; 0,345; 1,303; ...;
	^{117m}Cd		116,90738	11/2–	3,4 h	β^- 0,67; ...; γ 1,998; 1,433; 0,880; ...;
	^{118}Cd		117,9070*)	0+	49 min	β^- $\lessapprox$ 0,8;
	^{119}Cd		118,9097		10 min	β^- 3,5;
	^{119}Cd		118,9097		2,7 min	β^- 3,5;
	^{121}Cd				13 s	β^-;
49	^{106}In		105,9134		5,3 min	β^+ 3,1; 4,9; ...; γ 0,63; 1,65; 1,85; ...; K;
	^{107}In		106,9104		32 min	K; β^+ 2,2; ...; γ 0,22; 0,32; 0,73; ...;
	^{108}In		107,9097		39 min	K; β^+ 2,28; 2,66; 3,50; γ 0,383; 0,633; 0,842; e^-;
	^{108m}In		107,90967	(6, 7+)	56 min	K; β^+ 1,29; ...; γ 0,150; 0,175; 0,243; ...; e^-;
	^{109}In		108,90710	9/2+	4,3 h	K; β^+ 0,79; ...; γ 0,205; 0,28; 0,35; ...; e^-;
	^{109m_1}In		108,90781	(1/2–)	1,3 min	I.U. 0,658; γ; e^-;
	^{109m_2}In		108,90937	(19/2+)	0,20 s	I.U. 0,68; 1,43; 1,04; ...; γ;
	^{110}In		109,90723	(2+)	67 min	K; β^+ 2,25; ...; γ 0,658; e^-;
	^{110m}In			7(+)	4,9 h	K; γ 0,66; 0,91; ...; e^-; β^+ ?;
	^{111}In		110,9054	9/2+	2,81 d	K; kein β^+; γ 0,247; 0,173; e^-;
	^{112}In		111,90554	1+	14 min	K; β^+ 1,56; ...; γ 0,617; β^- 0,66;
	^{112m}In		111,90571	4+	20,7 min	I.U. 0,156; γ (9%); e^-;
	^{113}In	4,23	112,90409	9/2+		
	^{113m}In		112,90451	1/2–	100 min	I.U. 0,393; γ (64%); e^-;
	^{114}In		113,90490	1+	72 s	β^- 1,988; ...; K; (β^+); (γ);
	^{114m}In		113,90511	5+	50,0 d	I.U. 0,192; γ; e^-; K; γ 0,558; 0,724;
	^{115}In	95,77	114,90387	9/2+	$6 \cdot 10^{14}$ a	β^- 0,48; kein γ;
	^{115m}In		114,90423	1/2–	4,50 h	I.U. 0,335; γ (50%); e^-; β^- 0,83;
	^{116}In		115,90532	1+	14 s	β^- 3,3; ...; γ 1,293; ...;

	$^{116m_1}In$		115,905 38	5+	54,0 min	β^- 1,00; 0,87; 0,60; . . . ; γ 1,293; 1,09; 0,417; . . . ; keine I.U.;
	$^{116m_2}In$		115,905 53		2,16 s	I.U. 0,164; γ (50%); e^-;
	^{117}In		116,904 53	9/2+	44 min	β^- 0,74; γ 0,565; 0,158; e^-;
	^{117m}In		116,904 87	1/2–	1,93 h	β^- 1,78; 1,62; γ 0,158; I.U. 0,314; γ (31%); e^-;
	^{118}In		117,906 06	1+	5 s	β^- 4,2; 3,0; γ 1,230;
	^{118}In		117,906 2	(4, 5+)	4,4 min	β^- 1,3; 2,0; . . . ; γ 1,230; 1,05; 0,69; . . . ;
	^{119}In		118,906 0	(9/2+)	2,1 min	β^- 1,6; γ 0,82; 0,73;
	^{119m}In		118,906 3	(1/2–)	18 min	β^- 2,7; 1,9; γ 0,024; 0,91; I.U. 0,30; γ;
	^{120}In		119,907 9	(4, 5+)	46 s	β^- 2,2; 3,1; . . . ; γ 1,171; 1,02; 0,86; . . . ;
	^{120}In		119,907 7*)	(1)+	3,2 s	β^- 5,6; 4,4; γ 1,171;
	^{121}In		120,907 7*)		30 s	β^-; γ 0,94;
	^{121m}In		120,907 7*)		3,1 min	β^- 3,7;
	^{122}In		121,910 6*)		8 s	β^- 5; γ 0,99; 1,14;
	^{123}In		122,910 9*)		10 s	β^-; γ 1,1;
	^{123m}In		122,910 9*)		36 s	β^- 4,6;
	^{124}In		123,913 2		4 s	β^- 5; γ 1,13; 0,99; 3,21;
50	^{108}Sn			0+	9 min	K; γ 0,28; 0,42;
	^{109}Sn				18,1 min	K; β^+ 1,6; γ 0,335; 0,521; 1,12; . . . ; e^-;
	^{110}Sn			0+	4,0 h	K; γ 0,283; e^-;
	^{111}Sn		110,908 10		35 min	K; β^+ 1,50; . . . ; γ 0,75; 1,14; 1,89; . . . ;
	^{112}Sn	0,95	111,904 84	0+		
	^{113}Sn		112,905 18	(1/2+)	115 d	K; kein β^+; γ 0,255;
	^{113m}Sn		112,905 27	(7/2+)	20 min	I.U. 0,079; (γ); e^-; K; kein β^+;
	^{114}Sn	0,65	113,902 77	0+		
	^{115}Sn	0,34	114,903 35	1/2+		
	^{116}Sn	14,24	115,901 74	0+		
	^{117}Sn	7,57	116,902 96	1/2+		
	^{117m}Sn		116,903 30	11/2–	14,0 d	I.U. 0,158; γ (87%); e^-;
	^{118}Sn	24,01	117,901 61	0+		

Ordnungszahl Z	Symbol	Häufigkeit	Nuklidmasse	Kernspin und Parität	Halbwertzeit $t_{1/2}$	Zerfallsart und Energie der Strahlung
	^{119}Sn	8,58	118,90331	1/2+		
	^{119m}Sn		118,90341	11/2–	≲ 250 d	I.U. 0,024; 0,065; γ (16%); e^-;
	^{120}Sn	32,97	119,90220	0+		
	^{121}Sn		120,90423	(3/2+)	27 h	β^- 0,383;
	^{121m}Sn		120,90430	(11/2–)	76 a	β^- 0,42; γ 0,037; e^-;
	^{122}Sn	4,71	121,90344	0+		
	^{123}Sn		122,90574	11/2–	125 d	β^- 1,42; (γ);
	^{123m}Sn		122,90574	(3/2+)	40 min	β^- 1,26; γ 0,160; e^-;
	^{124}Sn	5,98	123,90527	0+		
	^{125}Sn		124,90775	(11/2–)	9,4 d	β^- 2,34; ...; γ 1,068; 0,811; 0,904; ...;
	^{125m}Sn		124,90777	(3/2+)	9,7 min	β^- 2,04; ...; γ 0,325; ...;
	^{126}Sn		125,9077*)	0+	≲ 10^5 a	β^-; γ 0,060; 0,067; 0,092;
	^{127}Sn		126,9103*)		2,1 h	β^- 1,45; γ 0,44—2,82;
	^{127}Sn		126,9103		4 min	β^- 2,7; γ 0,49;
	^{128}Sn		127,9105	0+	59 min	β^- 0,80; γ 0,50; 0,57; 0,072; ...;
	^{129}Sn				1,0 h	β^-;
	^{129}Sn				9 min	β^-; γ 1,15;
	^{130}Sn			0+	2,6 min	β^-;
	^{131}Sn				3,4 min	β^-;
	^{132}Sn			0+	2,2 min	β^-;
51	^{112}Sb				0,9 min	K; β^+; γ 1,27;
	^{113}Sb		112,90100		6,7 min	K; β^+ 2,42; 1,85; γ 0,32; 1,03; ...;
	^{114}Sb		113,9095		3,3 min	K; β^+ 2,7; 4,0; γ 0,9; 1,30;
	^{115}Sb		114,90660	(5/2+)	31 min	K; β^+ 1,51; ...; γ 0,499; 0,98; 1,24; ...;
	^{116}Sb		115,9066		15 min	K; β^+ 1,5; 2,3; γ 1,293; 0,93; 2,23; ...;
	^{116m}Sb		115,9071	(8–)	60 min	K; β^+ 1,16; γ 1,293; 0,96; 0,545; ...; e^-;
	^{117}Sb		116,9049	(5/2)+	2,8 h	K; β^+ 0,57; γ 0,158;
	^{118}Sb		117,90557	1+	3,5 min	K; β^+ 2,67; γ 1,23; ...;

Z	Nuklid	Häufigkeit	Masse	Spin	Halbwertszeit	Zerfall
	^{118m}Sb		117,90577	(8)–	5,1 h	K; (β^+); γ 1,230; 1,049; 0,254; ...; e^-;
	^{119}Sb		118,90393	(5/2+)	38,0 h	K; γ 0,024; e^-;
	^{120}Sb		119,90508	1+	15,9 min	K; β^+ 1,70; γ 1,171;
	^{120m}Sb			(8–)	5,8 d	K; γ 1,171; 1,03; 0,200; ...; e^-; kein β^+ oder I.U.;
	^{121}Sb	57,25	120,90382	5/2+		
	^{122}Sb		121,90518	2–	2,80 d	β^- 1,40; 1,97; 0,74; γ 0,564; 0,686; ...; K; (β^+); (γ);
	^{122m}Sb		121,90535	(8–)	4,2 min	I.U. 0,061; 0,075; 0,026; γ; e^-;
	^{123}Sb	42,75	122,90421	7/2+		
	^{124}Sb		123,90597	3–	60 d	β^- 0,61; 0,24; 2,31; ...; γ 0,603; 1,692; 0,72; ...;
	$^{124m_1}Sb$		123,90599		93 s	I.U. 0,01; γ; e^-; β^- 1,19; γ 0,505; 0,603; 0,644;
	$^{124m_2}Sb$		123,90601		21 min	I.U. 0,025; γ; e^-;
	^{125}Sb		124,90523	7/2+	2,7 a	β^- 0,30; 0,12; 0,61; ...; γ 0,427; 0,599; 0,634; ...; e^-;
	^{126}Sb		125,9074		12,5 d	β^- 1,9; γ 0,41; 0,67;
	^{126}Sb				19 min	β^- 1,9; γ 0,41; 0,67;
	^{127}Sb		126,90693	(7/2+)	93 h	β^- 0,86; 1,57; 1,11; γ 0,46; 0,77; 0,25; ...;
	^{128}Sb				9 h	β^- 1; γ 0,314; 0,53; 0,64; ...;
	^{128}Sb		127,9091		11 min	β^- 2,6; γ 0,75; 0,320; 1,07;
	^{129}Sb		128,9093*)		4,3 h	β^- 1,87; ...; γ 0,073—1,24;
	^{130}Sb		129,9120*)		7 min	β^-; γ 0,20; 1,03; 1,16; ...;
	^{130}Sb		129,9120*)		33 min	β^-; γ 0,19; 0,33; 0,82; ...;
	^{131}Sb				25 min	β^-; γ 0,95; 0,64;
	^{132}Sb				2,1 min	β^-;
	^{133}Sb				4,2 min	β^-;
52	^{115}Te		114,9114		6,0 min	K; β^+ 2,8; γ 0,72; 1,28; 1,38; ...;

Ordnungszahl Z	Symbol	Häufigkeit	Nuklidmasse	Kernspin und Parität	Halbwertzeit $t_{1/2}$	Zerfallsart und Energie der Strahlung
	^{116}Te		115,9083	0+	2,50 h	K; β^+ ?; γ 0,094; e^-;
	^{117}Te				1,9 h	β^+ 1,7;
	^{117}Te		116,9087	1/2+	61 min	K; β^+ 1,81; ...; γ 0,72; 1,78; 0,93;
	^{118}Te		117,9059*)	0+	6,0 d	K; kein γ;
	^{119}Te		118,9064	1/2+	15,9 h	K; β^+ 0,627; γ 0,645; 0,70; 1,76;
	^{119m}Te		118,9067	11/2–	4,7 d	K; γ 1,221; 0,153; 0,270; ...; e^-; (β^+);
	^{120}Te	0,089	119,90402	0+		
	^{121}Te		120,90519	1/2+	17 d	K; kein β^+; γ 0,573; 0,508; e^-;
	^{121m}Te		120,90551	11/2–	154 d	I.U. 0,0818; 0,212; γ; e^-; K; γ 1,10; ...;
	^{122}Te	2,46	121,90307	0+		
	^{123}Te	0,87	122,90428	1/2+		
	^{123m}Te		122,90454	11/2–	117 d	I.U. 0,0885; 0,159; γ; e^-;
	^{124}Te	4,61	123,90284	0+		
	^{125}Te	6,99	124,90442	1/2+		
	^{125m}Te		124,90457	11/2–	58 d	I.U. 0,035; 0,110; γ (7%); e^-;
	^{126}Te	18,71	125,90333	0+		
	^{127}Te		126,90521	(3/2+)	9,4 h	β^- 0,70; ...; (γ);
	^{127m}Te		126,90530	(11/2–)	109 d	I.U. 0,089; (γ); e^-; (β^-); (γ);
	^{128}Te	31,79	127,90448	0+		
	^{129}Te		128,90657	3/2+	69 min	β^- 1,45; 1,00; 0,37; ...; γ 0,027; 0,455; 1,08; ...; e^-;
	^{129m}Te		128,90669	11/2–	34 d	I.U. 0,106; γ; e^-; β^- 1,60; 0,91; γ 0,69;
	^{130}Te	34,49	129,90624	0+		
	^{131}Te		130,90857	3/2+	25 min	β^- 2,14; 1,69; 1,35; γ 0,150; 0,453; 0,493; ...; e^-;
	^{131m}Te		130,90877	11/2–	30 h	β^- 0,42; 0,54; 0,9; ...; γ 0,78; 0,85; 1,127; I.U. 0,181; γ; e^-;
	^{132}Te		131,90852	0+	78 h	β^- 0,22; γ 0,230; 0,053; e^-;
	^{133}Te			(3/2+)	12,5 min	β^-; γ 0,15—1,85;

Z	Nuklid	Häufigkeit	Masse	Spin	Halbwertszeit	Zerfall
	^{133m}Te			(11/2–)	50 min	β^- 2,4; γ 0,754; 0,432; 0,91; I.U. 0,334; γ; e^-;
	^{134}Te			0+	42 min	β^-; γ 0,204; 0,262; 0,17; …;
	^{135}Te				< 2 min	β^-;
53	^{117}J				7 min	β^+; K; γ 0,16; 0,34;
	^{118}J		117,9130		14 min	K; β^+ 5,5; γ 0,60; 0,55; 1,15;
	^{119}J				19 min	K; β^+; γ 0,26; 0,78;
	^{120}J		119,9100		1,3 h	K; β^+ 4,0; 2,1; γ 0,56; 0,62; 1,52;
	^{121}J		120,9077	(5/2+)	2,1 h	K; β^+ 1,2; γ 0,212; 0,32; 0,27;
	^{122}J		121,9075	1+	3,5 min	β^+ 3,1; 2,6; 1,8; K; γ 0,564; 0,69; 0,78;
	^{123}J		122,9057*)	5/2+	13,3 h	K; kein β^+; γ 0,159; 0,53; 0,34; …; e^-;
	^{124}J		123,90625	2–	4,2 d	K; β^+ 2,14; 1,53; 0,79; γ 0,605; 0,73; 1,69; …;
	^{125}J		124,90458	5/2+	60 d	K; kein β^+; γ 0,035; e^-;
	^{126}J		125,90563	2–	13 d	K; β^- 0,86; 1,25; 0,38; γ 0,386; 0,48; …; β^+ 1,13; …; γ 0,667;
	^{127}J	100	126,90447	5/2+		
	^{128}J		127,90584	1+	25,0 min	β^- 2,12; 1,67; 1,13; γ 0,441; 0,528; …; K;
	^{129}J		128,90499	7/2+	$1,7 \cdot 10^7$ a	β^- 0,150; γ 0,040; e^-;
	^{130}J		129,90672	5(–)	12,4 h	β^- 0,62; 1,04; 1,7; γ 0,669; 0,538; 0,743;
	^{131}J		130,906127	7/2+	8,05 d	β^- 0,606; 0,33; 0,25; …; γ 0,364; 0,637; 0,284; …; e^-;
	^{132}J		131,90798	4+	2,3 h	β^- 1,22; 1,61; 2,12; …; γ 0,67; 0,773; 0,955; …;
	^{133}J		132,9077	7/2+	21 h	β^- 1,27; 0,94; 0,7; γ 0,53; 0,87; 1,4; …;
	^{134}J		133,9098	(4, 5+)	52 min	β^- 2,43; 1,2; 1,4; …; γ 0,85; 0,89; 0,61; …;
	^{135}J		134,9100*)	7/2+	6,7 h	β^- 1,0; 0,5; 1,4; γ 1,14; 1,28; 1,72; …;
	^{136}J		135,9147	(2–)	83 s	β^- 4,3; 5,6; 2,7; …; γ 1,32; 0,39; 0,27; …;
	^{137}J				23 s	β^-; n 0,6;
	^{138}J				5,9 s	β^-; n;
	^{139}J				2 s	β^-; n;

Ordnungs-zahl Z	Symbol	Häufigkeit	Nuklidmasse	Kernspin und Parität	Halbwert-zeit $t_{1/2}$	Zerfallsart und Energie der Strahlung
54	^{118}Xe			0+	6 min	β^+; K; γ 0,05;
	^{119}Xe					β^+; K; γ 0,10;
	^{120}Xe			0+	40 min	K; γ 0,055—0,76;
	^{121}Xe		120,9118		39 min	β^+ 2,8; K; γ 0,080; 0,096; 0,132; ...;
	^{122}Xe			0+	20 h	K; γ 0,060—0,345; e^-;
	^{123}Xe		122,9087*)		2,1 h	K; β^+ 1,51; 0,090—1,10; e^-;
	^{124}Xe	0,096	123,9061	0+		
	^{125}Xe		124,9066*)	(1/2+)	17 h	K; kein β^+; γ 0,055; 0,188; 0,242; e^-;
	^{125m}Xe			(11/2–)	55 s	I.U.(?) 0,075; 0,111; γ;
	^{126}Xe	0,090	125,90429	0+		
	^{127}Xe		126,90495	(1/2+)	36,4 d	K; kein β^+; γ 0,203; 0,172; 0,375; ...; e^-;
	^{127m}Xe			(11/2–)	75 s	I.U. 0,125; 0,175; γ;
	^{128}Xe	1,919	127,90354	0		
	^{129}Xe	26,44	128,90478	1/2+		
	^{129m}Xe		128,90504	11/2–	8,0 d	I.U. 0,040; 0,197; γ (9; 6%); e^-;
	^{130}Xe	4,08	129,90351	0+		
	^{131}Xe	21,18	130,90509	3/2+		
	^{131m}Xe		130,90526	11/2–	11,8 d	I.U. 0,164; γ (2%); e^-;
	^{132}Xe	26,89	131,90416	0+		
	^{133}Xe		132,90582	(3/2+)	5,27 d	β^- 0,346; ...; γ 0,081; ...; e^-;
	^{133m}Xe		132,90606	(11/2–)	2,26 d	I.U. 0,233; γ (14%); e^-;
	^{134}Xe	10,4	133,90540	0+		
	^{135}Xe		134,9070	(3/2+)	9,2 h	β^- 0,92; 0,53; γ 0,250; 0,61; e^-;
	^{135m}Xe		134,9076	(11/2–)	15,6 min	I.U. 0,527; γ (80%); e^-;
	^{136}Xe	8,87	135,90722	0+		
	^{137}Xe		136,9111		3,9 min	β^- 3,6; 4,1; γ 0,455;
	^{138}Xe		137,9131	0+	17 min	β^- 2,4; γ 0,26; 1,78; 2,02; ...;
	^{139}Xe		138,9178		43 s	β^-; γ 0,22; 0,30; 0,18; ...;

Z	Nuklid	Häufigkeit	Masse	Spin	Halbwertszeit	Zerfall
	^{140}Xe			0+	16 s	β^-; γ 0,13;
	^{141}Xe				2 s	β^-;
	^{142}Xe				≈ 1,5 s	β^-;
	^{143}Xe				1 s	β^-;
	^{144}Xe				≈ 1 s	β^-;
55	^{123}Cs				8 min	β^+;
	^{125}Cs		124,9099*)		45 min	K; β^+ 2,05; γ 0,112; e^-;
	^{126}Cs		125,9094	1+	1,6 min	β^+ 3,8; ...; K; γ 0,386;
	^{127}Cs		126,9072	1/2+	6,2 h	K; β^+ 0,68; 1,06; ...; γ 0,406; 0,125; e^-;
	^{128}Cs		127,90776	1+	3,8 min	K; β^+ 2,9; 2,44; 1,9; ...; γ 0,441; 0,97; 1,12; ...; e^-;
	^{129}Cs		128,9060*)	1/2+	32 h	K; kein β^+; γ 0,375; 0,416; 0,550; ...; e^-;
	^{130}Cs		129,90672	1+	30 min	K; β^+ 1,97; β^- 0,442;
	^{131}Cs		130,90547	5/2+	9,70 d	K; kein β^+;
	^{132}Cs		131,90640	2–	6,5 d	K; (β^+); β^- 0,7; γ 0,668; 0,48; ...;
	^{133}Cs	100	132,90535	7/2+		
	^{134}Cs		133,90683	4+	2,05 a	β^- 0,662; 0,089; 0,410; γ 0,605; 0,796; 0,57; ...;
	^{134m}Cs		133,90698	8–	2,90 h	I.U. 0,128; 0,01; γ; e^-; β^- 0,55;
	^{135}Cs		134,9058	7/2+	$3 \cdot 10^6$ a	β^- 0,21; kein γ;
	^{135m}Cs		134,9075	(19/2–)	53 min	I.U. 0,781; 0,840; γ (100; 96%); e^-;
	^{136}Cs		135,9070	5	13 d	β^- 0,341; 0,657; 0,56; ...; γ 0,818; 1,05; 0,340; ...; e^-;
	^{137}Cs		136,9068	7/2+	30,0 a	β^- 0,514; 1,176;
	^{138}Cs		137,9101		32,2 min	β^- 3,40; 2,68; γ 1,426; 1,01; 0,463; ...;
	^{139}Cs		138,9129		9,5 min	β^- 4,6; γ 0,50—2,08;
	^{140}Cs		139,9171*)		66 s	β^-; γ 0,59—3,15;
	^{141}Cs				24 s	β^-;
	^{142}Cs				2,3 s	β^-;
	^{143}Cs				2,0 s	β^-;

Ordnungs-zahl Z	Symbol	Häufigkeit	Nuklidmasse	Kernspin und Parität	Halbwert-zeit $t_{1/2}$	Zerfallsart und Energie der Strahlung
56	^{123}Ba				2 min	β^+; K;
	^{125}Ba				6 min	K; β^+;
	^{126}Ba			0+	97 min	K; γ 0,23; 0,70;
	^{127}Ba		126,9113*)		10 min	β^+; K;
	^{128}Ba		127,9085*)	0+	2,4 d	K; γ 0,134; 0,278; e$^-$;
	^{129}Ba }				{ 2,6 h	{ K; β^+ 1,43; 1,24; 1,0; γ 0,182; 0,21; 1,45; . . .;
	$^{129m?}$Ba }				{ 2,1 h	{ e$^-$;
	^{130}Ba	0,101	129,90625	0+		
	^{131}Ba		130,90672	(1/2+)	12 d	K; kein β^+; γ 0,496; 0,124; 0,216; . . .; e$^-$;
	^{131m}Ba		130,90691		15 min	I.U. 0,107; γ (40%); e$^-$;
	^{132}Ba	0,097	131,9051	0+		
	^{133}Ba		132,90588	1/2+	7,2 a	K; kein β^+; γ 0,356; 0,080; 0,302; . . .; e$^-$;
	^{133m}Ba		132,90618	11/2–	38,9 h	I.U. 0,012; 0,276; γ; e$^-$;
	^{134}Ba	2,42	133,90461	0+		
	^{135}Ba	6,59	134,9055	3/2+		
	^{135m}Ba		134,9058	11/2–	28,7 h	I.U. 0,268; γ (16%); e$^-$;
	^{136}Ba	7,81	135,9043	0+		
	^{136m}Ba		135,9065	7–	0,32 s	I.U. 0,164; 0,818; 1,05; γ; e$^-$;
	^{137}Ba	11,32	136,9055	3/2+		
	^{137m}Ba		136,9062	11/2–	2,55 min	I.U. 0,662; γ (89%); e$^-$;
	^{138}Ba	71,66	137,9050	0+		
	^{139}Ba		138,9086	(7/2–)	82,9 min	β^- 2,3; 2,14; . . .; γ 0,166; . . .; e$^-$;
	^{140}Ba		139,91056		12,8 d	β^- 1,02; 0,46; . . .; γ 0,537; 0,030; 0,163; . . .; e$^-$;
	^{141}Ba		140,9140		18 min	β^- 3,0; . . .; γ 0,193; 0,28; 0,46; . . .;
	^{142}Ba		141,9164		11 min	β^- 1,7; γ 0,26; 0,89; 1,20; . . .;
	^{143}Ba				12 s	β^-;
57	^{126}La				1,0 min	β^+; K; γ 0,256;

Z	Nuklid	Häufigkeit	Masse	Spin	Halbwertszeit	Zerfall
	^{127}La				3,5 min	β^+; K;
	^{128}La				4,4 min	β^+; K; γ 0,279;
	^{129}La		128,9130*)		10 min	β^+; K;
	^{130}La		129,9123*)		8,7 min	β^+; K; γ 0,36—1,55;
	^{131}La		130,9099	(1/2+)	59 min	K; β^+ 1,42; 1,94; 0,70; γ 0,115; 0,364; 0,417; ...; e^-;
	^{132}La		131,9108		4,5 h	β^+ 3,8; K; γ 0,47—1,92;
	^{133}La		132,9082		4,0 h	K; β^+ 1,2; γ 0,8; e^-;
	^{134}La		133,9086	1+	6,7 min	β^+ 2,7; 2,1; K; γ 0,605;
	^{135}La		134,9066	(5/2+)	19,5 h	K; kein β^+; γ 0,481; ...; e^-;
	^{136}La		135,9074	1+	9,5 min	K; β^+ 1,9; ...; γ 0,818;
	^{137}La		136,9060*)	7/2+	$6 \cdot 10^4$ a	K; kein γ;
	^{138}La	0,089	137,9069	5–	$1,12 \cdot 10^{11}$ a	K; kein β^+; β^- 0,21; γ 1,426; 0,81;
	^{139}La	99,911	138,90614	7/2+		
	^{140}La		139,90944	3–	40,22 h	β^- 1,36; 1,10; 0,83; ...; γ 1,596; 0,487; 0,329; ...;
	^{141}La		140,91083		3,9 h	β^- 2,43; 0,91; γ 1,37;
	^{142}La		141,9140		92 min	β^- 4,51; ...; γ 0,65; 2,41; 2,55; ...;
	^{143}La		142,9158		14,0 min	β^- 3,3; ...; γ 0,62; 1,17; 0,80; ...;
58	^{129}Ce				≈ 13 min	β^+; K; γ 0,08; 0,32; 0,75;
	^{130}Ce			0+	30 min	K; β^+; γ 0,13;
	^{132}Ce		131,9116*)	0+	4,2 h	K; γ 0,18
	^{133}Ce		132,9112*)		6,3 h	K; β^+ 1,3; γ 1,8;
	^{134}Ce		133,9088	0+	72 h	K; kein γ;
	^{135}Ce		134,9091*)		17,2 h	K; (β^+); γ 0,265; 0,59; 0,300; ...; e^-;
	^{136}Ce	0,193	135,9071	0+		
	^{137}Ce		136,9073*)	3/2+	9,0 h	K; (β^+); γ 0,01; 0,446; ...; e^-;
	^{137m}Ce		136,9066	11/2–	34,4 h	I.U. 0,255; γ; e^-; (K; γ);
	^{138}Ce	0,250	137,9058	0+		
	^{138m}Ce			7–	9,2 ms	I.U. 0,30; 0,80; 1,04;
	^{139}Ce		138,90643	3/2+	140 d	K; kein β^+; γ 0,165; e^-;

Ordnungszahl Z	Symbol	Häufigkeit	Nuklidmasse	Kernspin und Parität	Halbwertzeit $t_{1/2}$	Zerfallsart und Energie der Strahlung
	^{139m}Ce		138,90723	(11/2–)	55 s	I.U. 0,746; γ (93%); e^-;
	^{140}Ce	88,48	139,90539	0+		
	^{141}Ce		140,90822	7/2–	33 d	β^- 0,44; 0,581; γ 0,145; e^-;
	^{142}Ce	11,07	141,90914			
	^{143}Ce		142,91233	3/2–	33 h	β^- 1,09; 1,39; 0,71; ...; γ 0,057; 0,293; 0,668; ...; e^-;
	^{144}Ce		143,91359		284 d	β^- 0,31; 0,18; 0,24; γ 0,134; 0,080; ...; e^-;
	^{145}Ce		144,9173*)		3,0 min	β^- 2,0; γ;
	^{146}Ce		145,9187	0+	14 min	β^- 0,7; γ 0,32; 0,22; 0,142; ...;
	^{147}Ce				65 s	β^-;
	^{148}Ce				$\lessapprox$ 43 s	β^-;
59	^{134}Pr				17 min	β^+; K; γ 0,22—0,96;
	^{135}Pr				22 min	β^+ 2,5; K; γ 0,080; 0,22; 0,30;
	^{136}Pr				1,1 h	K; β^+ 2,0; γ 0,17;
	^{137}Pr		136,9104*)	(5/2+)	1,5 h	K; β^+ 1,7; kein γ;
	^{138}Pr		137,9110		2,1 h	K; β^+ 1,65; γ 0,79; 1,04; 0,298; e^-;
	^{139}Pr		138,9087	(5/2+)	4,5 h	K; β^+ 1,09; (γ);
	^{140}Pr		139,90898	(1+)	3,39 min	K; β^+ 2,32; ...; (γ; e^-);
	^{141}Pr	100	140,90760	5/2+		
	^{142}Pr		141,90998	2–	19,2 h	β^- 2,16; 0,59; γ 1,57;
	^{143}Pr		142,91078	7/2+	13,6 d	β^- 0,933; kein γ;
	^{144}Pr		143,91325	0–	17,3 min	β^- 2,99; ...; γ 0,695; ...;
	^{145}Pr		144,91448		5,98 h	β^- 1,80; ...; γ 0,07—1,16;
	^{146}Pr		145,9176		24,0 min	β^- 3,7; 2,3; ...; γ 0,455; 1,51; 0,74; ...;
	^{147}Pr		146,9189		12,0 min	β^- 2,1; 1,4; ...; γ 0,32; 0,56; ...;
	^{148}Pr		147,9217		2,0 min	β^- 4,2; γ 0,30;
60	^{137}Nd				55 min	β^+ 3; K; γ 0,109; ...; e^-;

Z	Nuklid	Häufigkeit	Masse	Spin	Halbwertszeit	Zerfall
	^{139}Nd		138,9120*)		5,5 h	K; β^+ 3,1; γ 0,73; …; e^-; I.U. 0,232; e^-;
	^{140}Nd		139,9093*)	0+	3,3 d	K;
	^{141}Nd		140,90953	3/2+	2,5 h	K; β^+ 0,79; γ 1,14; …;
	^{141m}Nd		140,91034		63 s	I.U. 0,755; γ;
	^{142}Nd	27,13	141,90766	0+		
	^{143}Nd	12,20	142,90978	7/2–		
	^{144}Nd	23,87	143,91004	0+	$2{,}4 \cdot 10^{15}$ a	α 1,83;
	^{145}Nd	8,29	144,91254	7/2–		
	^{146}Nd	17,18	145,91308	0+		
	^{147}Nd		146,91607	5/2–	11,1 d	β^- 0,81; 0,37; …; γ 0,091; 0,533; …; e^-;
	^{148}Nd	5,72	147,91687	0+		
	^{149}Nd		148,92012	5/2–	1,8 h	β^- 1,42; 1,02; 1,5; …; γ 0,076—0,654; e^-;
	^{150}Nd	5,60	149,92091	0+		
	^{151}Nd		150,9238		12 min	β^- 2,0; 1,2; 1,8; 1,6; γ 0,118; 0,256; 0,174; …; e^-;
61	^{141}Pm		140,9134		22 min	β^+ 2,6; K; γ 0,195;
	^{142}Pm		141,9128		40 s	β^+ 3,78; K;
	^{143}Pm		142,9109	(7/2+)	0,73 a	K; γ 0,742; e^-;
	^{144}Pm		143,9125*)	(6–)	1,1 a	K; kein β^+; γ 0,615; 0,695; 0,474; e^-;
	^{145}Pm		144,9127	(5/2+)	17,7 a	K; (α); γ 0,067; 0,072; e^-;
	^{146}Pm		145,91463	(3, 4–)	4 a	K; β^- 0,78; γ 0,75; 0,453;
	^{147}Pm		146,91511	7/2+	2,62 a	β^- 0,224;
	^{148}Pm		147,91745	1–	5,4 d	β^- 2,48; 1,02; 1,93; γ 1,465; 0,551; 0,914;
	^{148m}Pm		147,91760	6–	42 d	β^- 0,40; 0,50; 0,69; …; γ 0,551; 0,630; 0,727; …; I.U. 0,076; 0,062; e^-;
	^{149}Pm		148,91833	7/2+	53,1 h	β^- 1,07; 0,79; …; γ 0,286; …;
	^{150}Pm		149,9210	(1)	2,7 h	β^- 2,01; 3,05; …; γ 0,334; …;
	^{151}Pm		150,9212	5/2+	28 h	β^- 0,84; 1,19; γ 0,340; 0,17; …; e^-;
	^{152}Pm		151,9235*)		6 min	β^- 2,2; γ 0,122; 0,245;
	^{153}Pm		152,9240		5,5 min	β^- 1,65; γ 0,12; 0,18;
	^{154}Pm				2,5 min	β^- 2,5;

Ordnungs-zahl Z	Symbol	Häufigkeit	Nuklidmasse	Kernspin und Parität	Halbwert-zeit $t_{1/2}$	Zerfallsart und Energie der Strahlung
62	^{142}Sm			0+	73 min	K; β^+ 1,03; γ 0,15—0,35;
	^{143}Sm		142,9145		8,9 min	K; β^+ 2,3;
	^{143m}Sm		142,9154		64 s	I.U. 0,748; γ;
	^{144}Sm	3,16	143,91199	0+		
	^{145}Sm		144,91340	(7/2–)	340 d	K; kein β^+; γ 0,061; . . . ; e^-;
	^{146}Sm		145,91299	0+	$7 \cdot 10^7$ a	α 2,46;
	^{147}Sm	15,07	146,91487	7/2–	$1,05 \cdot 10^{11}$ a	α 2,23;
	^{148}Sm	11,27	147,91479	0+		
	^{149}Sm	13,82	148,91718	7/2–		
	^{150}Sm	7,47	149,91727	0+		
	^{151}Sm		150,91992	(5/2, 7/2–)	≈ 87 a	β^- 0,076; . . . ; γ 0,022; e^-;
	^{152}Sm	26,63	151,91976	0+		
	^{153}Sm		152,92210	3/2+	47 h	β^- 0,70; 0,80; 0,64; . . . ; γ 0,103; 0,070; . . . ; e^-;
	^{154}Sm	22,53	153,92228	0+		
	^{155}Sm		154,92470	(3/2–)	23 min	β^- 1,53; . . . ; γ 0,104; 0,246; . . . ; e^-;
	^{156}Sm		155,92557	0+	9,4 h	β^- 0,72; 0,43; γ 0,088; 0,204; . . . ; e^-;
	^{157}Sm				30 s	β^-; γ 0,57;
63	^{144}Eu			1+	10 s	β^+ 5,2; K;
	^{145}Eu		144,9164		5,9 d	K; β^+; γ 0,894; 0,656; . . . ; e^-;
	^{146}Eu		145,9171	(4–)	4,6 d	K; β^+ 1,47; . . . ; γ 0,749; 0,634; . . . ; e^-;
	^{147}Eu		146,9168	(5/2+)	22 d	K; (β^+); (α); γ 0,198; 0,122; . . . ; e^-;
	^{148}Eu		147,9181	(4–)	54 d	K; (β^+); (α); γ 0,551; 0,62; . . . ; e^-;
	^{149}Eu		148,9180*)	(5/2+)	106 d	K; γ 0,277; 0,328; . . . ; e^-;
	^{150}Eu		149,91969	(0, 1–)	12,6 h	β^- 1,01; . . . ; K; (β^+); γ 0,334; 0,406; . . . ;
	^{150}Eu			(4, 5–)	≈ 5 a	K; γ 0,334; 0,439; . . . ; e^-;
	^{151}Eu	47,77	150,91984	5/2(+)		
	^{152}Eu		151,92175	3–	12 a	K; (β^+); β^- 0,69; 1,48; . . . ; γ 0,122; 0,344; 1,408; . . . ; e^-;

Z	Nuklid	Häufigkeit	Masse	Spin	Halbwertszeit	Zerfall
	^{152m_1}Eu		151,921 80	(0–)	9,3 h	β^- 1,88; 1,55; ...; K; (β^+); γ 0,842; 0,963; 0,122; ...; e^-;
	^{152m_2}Eu		151,921 91	8–	96 min	I.U. 0,090; ...; γ; e^-;
	^{153}Eu	52,23	152,921 24	5/2+		
	^{154}Eu		153,923 05	3–	16 a	β^- 0,59; 0,89; 0,27; ...; γ 1,278; 0,123; 1,00; ...; e^-;
	^{155}Eu		154,922 93	(5/2+)	1,81 a	β^- 0,15; 0,19; 0,25; ...; γ 0,087; 0,105; ...; e^-;
	^{156}Eu		155,924 80	0+	15 d	β^- 0,47; 2,45; ...; γ 1,24; 1,15; 0,089; ...; e^-;
	^{157}Eu		156,925 46		15,2 h	β^- 1,3; ...; γ 0,064; 0,413; ...; e^-;
	^{158}Eu		157,928 0		46 min	β^- 2,5; ...; γ 0,080; 0,95; ...; e^-;
	^{159}Eu		158,929 12		18 min	β^- 2,6; ...; γ 0,07; 0,67; 0,09; ...;
64	^{145}Gd				25 min	K; β^+ 2,4; γ 1,75; 1,03; 0,80;
	^{146}Gd		145,918 2*)	0+	50 d	K; (β^+); γ 0,115; 0,155; 0,078; e^-;
	^{147}Gd		146,919 1*)		35 h	K; kein β^+; γ 0,229; 0,39; 0,93; ...; e^-;
	^{148}Gd		147,918 10	0+	84 a	α 3,18;
	^{149}Gd		148,919 3	(7/2–)	9,4 d	K; kein β^+; (α); γ 0,150; 0,299; 0,347; ...; e^-;
	^{150}Gd		149,918 6	0+	$2{,}1 \cdot 10^6$ a	α 2,73;
	^{151}Gd		150,920 3*)	(7/2–)	120 d	K; kein β^+; (α); γ 0,154; 0,244; ...; e^-;
	^{152}Gd	0,20	151,919 79	0+	$1{,}1 \cdot 10^{14}$ a	α 2,1;
	^{153}Gd		152,921 50	3/2+	242 d	K; kein β^+; γ 0,099; ...; e^-;
	^{154}Gd	2,15	153,920 93	0+		
	^{155}Gd	14,7	154,922 66	3/2–		
	^{156}Gd	20,47	155,922 17	0+		
	^{157}Gd	15,68	156,924 02	3/2–		
	^{158}Gd	24,9	157,924 18	0+		
	^{159}Gd		158,926 37	3/2–	18,0 h	β^- 0,95; 0,89; 0,59; ...; γ 0,363; 0,058; ...; e^-;

Ordnungszahl Z	Symbol	Häufigkeit	Nuklidmasse	Kernspin und Parität	Halbwertzeit $t_{1/2}$	Zerfallsart und Energie der Strahlung
	^{160}Gd	21,9	159,92712	0+		
	^{161}Gd		160,9297	(5/2)–	3,7 min	β^- 1,60; 1,54; ...; γ 0,361; 0,315; 0,102; ...; e^-;
65	^{147}Tb				24 min	K; β^+; γ 0,305; ...;
	^{148}Tb		147,9241		70 min	K; β^+ 4,6; γ 0,78; 1,12;
	^{149}Tb		148,9233		4,1 h	K; α 3,95; γ 0,16; 0,35; ...; e^-;
	^{149m}Tb				4,3 min	I.U.; K; β^+; (α);
	^{150}Tb		149,92375		3,1 h	K; β^+ 3,6; ...; γ 0,637; ...;
	^{151}Tb		150,9231		18 h	K; (α); γ 0,252; 0,108; 0,288; ...; e^-;
	^{152}Tb		151,9243		18 h	K; β^+ 2,82; 1,93; ...; γ 0,344; 0,271; 0,586; ...; e^-;
	^{152}Tb				4,0 min	K; β^+; (α); γ 0,23; 0,14;
	^{153}Tb		152,9235*)	(5/2–)	55 h	K; γ 0,212; 0,11; 0,083; ...; e^-;
	^{154}Tb		153,9246*)		21 h	K; (β^+); γ 0,12—2,5; e^-;
	^{154}Tb		153,9246*)		8,5 h	K; γ 0,123; ...; e^-;
	^{155}Tb		154,9236*)	(3/2+)	5,6 d	K; γ 0,087; 0,105; 0,163; ...; e^-;
	^{156}Tb		155,9247*)	(3–)	5,4 d	K; kein β^+; γ 0,535; 0,199; 1,22; ...; e^-;
	^{156m}Tb		155,9249	(0+)	5,5 h	I.U. 0,088; (γ); e^-; K; (β^-); e^-;
	^{157}Tb		156,92409	(3/2+)	150 a	K;
	^{158}Tb		157,92546	(3–)	1200 a	K; β^- 0,85; ...; γ 0,080; 0,95; ...; e^-;
	^{158m}Tb		157,92558	(0–)	11 s	I.U. 0,110; γ (0,5%); e^-;
	^{159}Tb	100	158,92535	3/2+		
	^{160}Tb		159,92715	3–	72,1 d	β^- 0,56; 0,86; 0,46; ...; γ 0,879; 0,299; 0,966; ...; e^-;
	^{161}Tb		160,92757	3/2+	6,9 d	β^- 0,52; 0,46; 0,59; ...; γ 0,026; 0,049; ...; e^-;
	^{162}Tb		161,9398*)		7,5 min	β^-; γ 0,258; 0,89; 0,81; ...; e^-;
	^{162}Tb		161,9398*)		2,2 h	β^-;
	^{163}Tb				6,5 h	β^- 1,4; 1,65; ...; γ 0,330; 0,025; ...;
	^{164}Tb		163,9334*)		23 h	β^-;

66	^{149}Dy				≈ 15 min	K;
	^{150}Dy		149,9256*)	0+	7,2 min	K; β^+; α 4,23; γ 0,39;
	^{151}Dy		150,9263*)		18 min	K; β^+; α 4,06; γ 0,145;
	^{152}Dy		151,92473	0+	2,4 h	K; β^+; (α); γ 0,257;
	^{153}Dy		152,9257		6,4 h	K; (α); γ 0,08; ...; e^-;
	^{154}Dy		153,9243		10^6 a	α 2,85;
	^{154m}Dy				13 h	α 3,37;
	^{155}Dy		154,9259*)	(3/2–)	10,2 h	K; β^+ 0,85; ...; γ 0,227; 0,52; ...; e^-;
	^{156}Dy	0,0524	155,9239	0+		
	^{157}Dy		156,9253*)	(3/2–)	8,1 h	K; kein β^+; γ 0,326; 0,182; 0,083; ...; e^-;
	^{158}Dy	0,0902	157,92445	0+		
	^{159}Dy		158,92576	3/2–	144 d	K; γ 0,058; ...; e^-;
	^{160}Dy	2,294	159,92520	0+		
	^{161}Dy	18,88	160,92694	5/2+		
	^{162}Dy	25,53	161,92680	0+		
	^{163}Dy	24,97	162,92876	5/2–		
	^{164}Dy	28,18	163,92920	0+		
	^{165}Dy		164,93182	7/2+	139,2 min	β^- 1,29; 1,21; ...; γ 0,095; 0,361; ...; e^-;
	^{165m}Dy		164,93194	1/2–	1,26 min	I.U. 0,108; γ; e^-; β^- 0,89; ...; γ 0,15—0,52; e^-;
	^{166}Dy		165,93281	0+	81,5 h	β^- 0,402; 0,48; ...; γ 0,082; ...; e^-;
	^{167}Dy				4,4 min	β^-;
67	^{151}Ho				42 s	K; β^+; α 4,60;
	^{151}Ho				36 s	K; β^+; α 4,51;
	^{152}Ho		151,9315*)		2,4 min	K; β^+; α 4,38;
	^{152}Ho				52 s	K; β^+; α 4,45;
	^{153}Ho		152,9303		9,0 min	K; β^+; (α);
	^{154}Ho		153,9303*)		7,0 min	β^+; K; γ 0,335;
	^{155}Ho				50 min	β^+ 2,1; K; γ 0,092—0,326;
	^{156}Ho				55 min	K; β^+ 1,8; 1,3; ...; γ 0,138; 0,266; 0,367; ...; e^-;

Ordnungs-zahl Z	Symbol	Häufigkeit	Nuklidmasse	Kernspin und Parität	Halbwert-zeit $t_{1/2}$	Zerfallsart und Energie der Strahlung
	^{157}Ho				14 min	β^+; K; γ 0,08—1,2;
	^{158}Ho		157,92879		11 min	K; γ 0,099—3,1; e^-;
	^{158m}Ho		157,9389		29 min	I.U. 0,067; e^-; K; β^+ 1,32; γ 0,099—2,62; e^-;
	^{159}Ho		158,9277*⁾		33 min	K; γ 0,057—0,31; e^-;
	^{159m}Ho		158,928		6,9 s	I.U. 0,206; γ; e^-;
	^{160}Ho		159,9287	(5+)	26 min	K; (β^+); γ 0,729; 0,965; 0,880; ...; e^-;
	^{160m}Ho		159,9288	(2–)	5,0 h	I.U. 0,060; e^-; K; (β^+); γ siehe ^{160}Ho;
	^{161}Ho		160,9278*⁾	7/2–	2,5 h	K; γ 0,026; 0,075; ...; e^-;
	^{161m}Ho		160,928		6 s	I.U. 0,211; γ; e^-;
	^{162}Ho		161,92912	1+	15,0 min	K; β^+ 1,10; γ 0,081;
	^{162m}Ho		161,92923	6–	68 min	I.U. 0,038; 0,058; e^-; K; γ 1,224; 0,185; 0,940; ...; e^-;
	^{163}Ho		162,92877	7/2–	> 10^3 a	
	^{163m}Ho		162,92909	1/2+	1,1 s	I.U. 0,305; γ; e^-;
	^{164}Ho		163,93039		37 min	β^- 0,99; K; kein β^+; γ 0,073; 0,091; e^-;
	^{165}Ho	100	164,93042	7/2–		
	^{166}Ho		165,93229	0–	26,9 h	β^- 1,84; 1,76; ...; γ 0,081; ...; e^-;
	^{166m}Ho		165,93230	(7–)	1,2 · 10^3 a	β^- 0,07; γ 0,184; 0,810; 0,711; ...; e^-;
	^{167}Ho		166,9331	(7/2–)	3,1 h	β^- 0,96; 0,28; γ 0,079—0,39; e^-;
	^{168}Ho		167,9359		3,3 min	β^- 2,2; γ 0,85;
	^{169}Ho		168,9369		4,8 min	β^- 1,20; 1,95; γ 0,76; 0,84; ...;
	^{170}Ho		169,9401		45 s	β^- 3,1; γ 0,43;
68	^{157}Er				≈ 25 min	β^+; K; γ 0,117—2,0;
	^{158}Er			0–	2,3 h	K; β^+ 0,8; γ 0,072; 0,250; ...; e^-;
	^{159}Er				36 min	K; β^+; γ 0,37—2,60; e^-;
	^{160}Er			0+	29 h	K; kein β^+; kein γ;
	^{161}Er		160,9300*⁾	(3/2–)	3,1 h	K; β^+ 1,2; γ 0,826; 0,211; 0,592; ...; e^-;

Z	Nuklid	Häufigkeit	Masse	Spin	Halbwertszeit	Zerfall
	^{162}Er	0,136	161,9287	0+		
	^{163}Er		162,93006	5/2–	75 min	K; (β^+); (γ);
	^{164}Er	1,56	163,92929	0+		
	^{165}Er		164,93082	5/2–	10,3 h	K; kein β^+; kein γ;
	^{166}Er	33,41	165,93030	0+		
	^{167}Er	22,94	166,93206	7/2+		
	^{167m}Er		166,93228	1/2–	2,3 s	I.U. 0,208; γ; e^-;
	^{168}Er	27,07	167,93238	0+		
	^{169}Er		168,93461	1/2–	9,4 d	β^- 0,34; (γ); e^-;
	^{170}Er	14,88	169,9356	0+		
	^{171}Er		170,9382	5/2–	7,52 h	β^- 1,06; 0,58; 1,49; ...; γ 0,308; 0,296; 0,112; ...; e^-;
	^{172}Er		171,9393	0+	49 h	β^- 0,37; 0,31; 0,89; ...; γ 0,407; 0,610; ...; e^-;
69	^{161}Tm		160,9337*)		30 min	K; γ 0,08—0,17; e^-;
	^{162}Tm		161,9340	(3)	77 min	K; γ 0,102; 0,236;
	^{163}Tm		162,93251	(1/2+)	1,8 h	K; β^+ 1,1; 0,40; γ 0,104; 0,240; 0,34; ...; e^-;
	^{164}Tm		163,9335	(1+)	1,9 min	K; β^+ 2,94; ...; γ 0,091; ...; e^-;
	^{165}Tm		164,93251	(1/2+)	30,1 h	K; (β^+); γ 0,243; 0,297; ...; e^-;
	^{166}Tm		165,93357	2+	7,7 h	K; β^+ 1,94; γ 0,78; 2,06; 0,69; ...; e^-;
	^{167}Tm		166,93330	1/2+	9,6 d	K; kein β^+; γ 0,208; 0,057; 0,532; e^-;
	^{168}Tm		167,9342		85 d	K; γ 0,82; 0,19; 0,73; ...; e^-;
	^{169}Tm	100	168,93424	1/2–		
	^{170}Tm		169,9361	1–	130 d	β^- 0,97; 0,886; (K); γ 0,084; e^-;
	^{171}Tm		170,9365	1/2+	1,92 a	β^- 0,097; ...; γ 0,067; e^-;
	^{172}Tm		171,9384	2–	63,6 h	β^- 1,80; 1,88; 0,42; ...; γ 1,09; 1,39; 1,46; ...;
	^{173}Tm		172,9395		8,2 h	β^- 0,89; ...; γ 0,399; 0,465; 0,066; e^-;
	^{174}Tm		173,9414		5,5 min	β^- 2,5; kein γ;
	^{174m}Tm		173,9419		5,2 min	β^- 1,2; γ 0,366; 0,99; 0,273; ...; e^-;

Ordnungs-zahl Z	Symbol	Häufigkeit	Nuklidmasse	Kernspin und Parität	Halbwert-zeit $t_{1/2}$	Zerfallsart und Energie der Strahlung
70	^{164}Yb			0+	76 min	K;
	^{165}Yb		164,9355*)		10 min	K; β^+;
	^{166}Yb		165,9339	0+	57,5 h	K; γ 0,082; e$^-$;
	^{167}Yb		166,93540	(5/2)–	18 min	K; (β^+); γ 0,113; 0,176; e$^-$;
	^{168}Yb	0,140	167,9342	0+		
	^{169}Yb		168,9356*)	(7/2+)	32 d	K; γ 0,063; 0,198; 0,177; ...; e$^-$;
	^{169m}Yb		168,9356	(1/2–)	46 s	I.U. 0,024; e$^-$;
	^{170}Yb	3,03	169,9350	0+		
	^{171}Yb	14,31	170,9364	1/2–		
	^{172}Yb	21,82	171,9363	0+		
	^{173}Yb	16,13	172,9381	5/2–		
	^{174}Yb	31,84	173,9387	0+		
	^{175}Yb		174,9411	7/2–	101 h	β^- 0,466; 0,073; 0,35; ...; γ 0,396; 0,283; 0,114; ...; e$^-$;
	^{176}Yb	12,73	175,9427	0+		
	^{176m}Yb		175,9437	(8–)	11 s	I.U. 0,19; 0,29; 0,39; γ;
	^{177}Yb		176,9455	9/2+	1,9 h	β^- 1,40; ...; γ 0,151; 1,080; 1,241; ...; e$^-$;
	^{177m}Yb		176,9458	1/2–	6,5 s	I.U. 0,104; 0,228; γ; e$^-$;
71	^{167}Lu		166,9387		54 min	K; β^+ 1,5; 1,1; γ 0,03—0,402; e$^-$;
	^{168}Lu		167,9391*)	(1–)	7,1 min	K; β^+ 1,2; γ 0,99; 0,90; 0,087; ...;
	^{169}Lu		168,9380*)	(7/2+)	34 h	K; β^+ 1,2; 0,4; γ 0,063—2,2; e$^-$;
	^{169m}Lu		168,9380	(1/2–)	2,7 min	I.U. 0,029; e$^-$;
	^{170}Lu		169,9387	0+	2,0 d	K; (β^+); γ 0,084—3,2; e$^-$;
	^{170m}Lu		169,9388	4–	0,7 s	I.U. 0,044; 0,048; e$^-$;
	^{171m}Lu		170,9377	(1/2–)	76 s	I.U. 0,071; (γ); e$^-$;
	^{171}Lu		170,9377*)	(7/2+, 9/2–)	8,3 d	K; (β^+); γ 0,74; 0,019; 0,668; ...; e$^-$;
	^{172}Lu		171,9388*)	(4–)	6,7 d	K; γ 1,09; 0,90; 0,182; ...; e$^-$;

Z	Nuklid	Häufigkeit	Masse	Spin	Halbwertszeit	Zerfall
	^{172m}Lu		171,9388	(1–)	3,7 min	I.U. 0,042; e^-;
	^{173}Lu		172,9388	(7/2+)	1,37 a	K; kein β^+; γ 0,272; 0,079; 0,101; ...; e^-;
	^{174}Lu		173,9403	1–	3,6 a	K; kein β^+; γ 1,24; 0,076; e^-;
	^{174m}Lu		173,9405	6–	140 d	I.U. 0,045; 0,059; 0,067; γ; e^-; K; γ 0,994; 0,273; ...; e^-;
	^{175}Lu	97,40	174,9406	7/2+		
	^{176}Lu	2,60	175,9427	7(–)	$3 \cdot 10^{10}$ a	β^- 0,43; γ 0,306; 0,202; 0,088; e^-;
	^{176m}Lu		175,9430	1(–)	3,7 h	β^- 1,22; 1,31; γ 0,088; e^-;
	^{177}Lu		176,9440	7/2+	6,7 d	β^- 0,497; 0,175; 0,385; ...; γ 0,208; 0,113; ...; e^-;
	^{177m}Lu		176,9450		155 d	β^- 0,165; γ 0,228; 0,378; ...; e^-; I.U. 0,116; 0,414; ...; γ; e^-;
	^{178}Lu		177,9463		20,0 min	β^- 1,50; γ 0,09; 0,22; 0,33; ...;
	^{179}Lu		178,9475	(7/2+)	4,6 h	β^- 1,35; 1,1; γ 0,213;
72	^{168}Hf			0+	22 min	K; γ 0,129; 0,17;
	^{169}Hf				1,5 h	K; β^+ 1,3; γ 0,115;
	^{170}Hf			0+	12,2 h	K; γ 0,120—2,94; e^-;
	^{171}Hf				11 h	K; γ 0,122—1,07;
	^{172}Hf			0+	5 a	K; γ 0,024; 0,125; 0,082; ...; e^-;
	^{173}Hf			(1/2–)	23,6 h	K; γ 0,13; 0,30; 0,162; ...; e^-;
	^{174}Hf	0,163	173,9404	0+	$2 \cdot 10^{15}$ a	α 2,50;
	^{175}Hf		174,9413	(5/2–)	70 d	K; γ 0,343; 0,089; 0,433; e^-;
	^{176}Hf	5,21	175,9416	0+		
	^{177}Hf	18,56	176,9434	7/2–		
	^{177m}Hf		176,9448	23/2+	1,1 s	I.U. 0,208; 0,228; 0,378; ...; γ; e^-;
	^{178}Hf	27,1	177,9439	0+		
	^{178m}Hf		177,9451	(8–)	4,3 s	I.U. 0,427; 0,326; 0,214; ...; γ; e^-;
	^{179}Hf	13,75	178,9460	9/2+		
	^{179m}Hf		178,9464	1/2–	19 s	I.U. 0,161; 0,217; γ; e^-;
	^{180}Hf	35,22	179,9468	0+		
	^{180m}Hf		179,9480	8–	5,5 h	I.U. 0,333; 0,215; 0,444; ...; γ; e^-;

Ordnungs-zahl Z	Symbol	Häufigkeit	Nuklidmasse	Kernspin und Parität	Halbwert-zeit $t_{1/2}$	Zerfallsart und Energie der Strahlung
	^{181}Hf		180,9491	(1/2–)	42,5 d	β^- 0,408; 0,404; γ 0,482; 0,133; 0,346; …; e^-;
	^{182}Hf		181,9508	0+	$9 \cdot 10^6$ a	β^- 0,5; γ 0,271;
	^{183}Hf		182,9538		65 min	β^- 1,2; 1,6; 0,7; γ 0,82; 0,46; …;
73	^{172}Ta				44 min	β^+; K; γ 0,092—3,3;
	^{173}Ta				3,7 h	K; β^+ ?; γ 0,090; 0,170; 0,64; 1,00; e^-;
	^{174}Ta				1,2 h	K; β^+; γ 0,091—0,350; e^-;
	^{175}Ta				10,5 h	K; kein β^+; γ 0,08—1,7; e^-;
	^{176}Ta		175,9452	(1–)	8,0 h	K; kein β^+; γ 0,088; 0,202—3,0; e^-;
	^{177}Ta		176,9446	(7/2+)	56,6 h	K; γ 0,113; 0,208; …; e^-;
	^{178}Ta		177,9459	(7, 8, 9)–	2,1 h	K; γ 0,328; 0,427; 0,214; …; e^-;
	^{178}Ta		177,9459	1+	9,4 min	K; β^+ 0,89; 0,80; γ 0,093; 1,35; 1,10; …; e^-;
	^{179}Ta		178,9462	(7/2+)	≈ 600 d	K; kein γ;
	^{180}Ta	0,0123	179,94755			
	^{180m}Ta		179,94777	1(–)	8,1 h	K; kein β^+; β^- 0,71; 0,61; γ 0,093; …; e^-;
	^{181}Ta	99,9877	180,94801	7/2+		
	^{182}Ta		181,95024	(3–)	115 d	β^- 0,522; 0,43; …; γ 0,068; 1,122; 1,222; …; e^-;
	^{182m}Ta		181,95079	(8+)	16,5 min	I.U. 0,147; 0,172; 0,184; …; γ; e^-;
	^{183}Ta		182,95147	7/2+	5,1 d	β^- 0,62; …; γ 0,246; 0,161; …; e^-;
	^{184}Ta		183,9540		8,7 h	β^- 1,19; 1,45; …; γ 0,41; 0,90; 0,25; …; e^-;
	^{185}Ta		184,9557		50 min	β^- 1,7; 0,15; γ 0,175; 0,100; 0,245; …;
	^{186}Ta		185,9584		10 min	β^- 2,2; γ 0,20; 0,73; 0,51; …;
74	^{173}W				16 min	K;
	^{174}W			0+	31 min	K;
	^{175}W				34 min	K;
	^{176}W		175,9463	0+	2,3 h	K; (β^+); γ 0,034; 0,100; e^-;

Z	Nuklid	Häufigkeit	Masse	Spin	Halbwertszeit	Zerfall
	^{177}W		176,9463		135 min	K; γ 0,20; 0,83; 1,00; ...; e^-;
	^{178}W		177,9463	0+	21,5 d	K;
	^{179}W		178,9474	(7/2–)	38 min	K; γ 0,031; e^-;
	^{179m}W		178,9474	(1/2–)	5,2 min	I.U. 0,222; γ; e^-;
	^{180}W	0,135	179,9470	0+		
	^{181}W		180,9482	(9/2+)	140 d	K; γ 0,006; ...; e^-;
	^{182}W	26,4	181,9483	0+		
	^{183}W	14,4	182,95033	1/2–		
	^{183m}W		182,95066	(9/2?)+	5,3 s	I.U. 0,108; 0,053; 0,099; ...; γ; e^-;
	^{184}W	30,6	183,95102	0+		
	^{185}W		184,95352	3/2–	75 d	β^- 0,429; kein γ;
	^{185m}W		184,95391		1,6 min	I.U. 0,17; 0,13; 0,100; ...; γ;
	^{186}W	28,4	185,95444	0+		
	^{187}W		186,95724	3/2–	23,9 h	β^- 0,63; 1,31; 0,34; ...; γ 0,686; 0,479; 0,072; ...; e^-;
	^{188}W		187,95873	0+	69 d	β^- 0,349; ...; (γ);
	^{189}W		188,9621		11,5 min	β^- 2,0; 2,5; γ 0,258; 0,417; 0,55; ...;
75	^{177}Re		176,9495		17 min	β^+; K;
	^{178}Re				15 min	β^+ 3,1; K;
	^{179}Re		178,9506		20 min	K;
	^{180}Re				20 h	β^+ 1,9; K;
	^{180}Re				2,4 min	β^+ 1,1; γ 0,11; 0,88;
	^{181}Re		180,9495		18 h	K; γ 0,02—1,54; e^-;
	^{182}Re			(6, 7)–	64 h	K; γ 0,02—1,44; e^-;
	^{182m}Re		181,95137	(2, 3–)	12,7 h	K; γ 0—2,05; e^-; (β^+);
	^{183}Re		182,9513*)	5/2+	71 d	K; γ 0,04—0,40; e^-;
	^{184}Re		183,9528	(3–)	38 d	K; γ 0,111; 0,78; 0,90; e^-;
	^{184m}Re		183,9528	(8+)	169 d	I.U. 0,0834; 0,1047; e^-; K; γ 0,111; 0,78; 0,90;
	^{185}Re	37,07	184,95306	5/2+		
	^{186}Re		185,9550	1–	90 h	β^- 1,07; 0,93; ...; γ 0,137; ...; e^-; K;

Ordnungszahl Z	Symbol	Häufigkeit	Nuklidmasse	Kernspin und Parität	Halbwertzeit $t_{1/2}$	Zerfallsart und Energie der Strahlung
	$^{186?}Re$				1 h	
	^{187}Re	62,93	186,95583	5/2+	$4 \cdot 10^{10}$ a	β^- 0,003;
	^{188}Re		187,95835	1–	16,7 h	β^- 2,12; 1,96; ...; γ 0,155; ...; e^-;
	^{188m}Re		187,95854	6–	18,7 min	I.U. 0,092; 0,106; ...; γ; e^-;
	^{189}Re		188,9594	(5/2+)	24 h	β^- 1,00; 0,78; 0,72; ...; γ 0,218; 0,150; 0,245; ...; e^-;
	^{190}Re		189,9620		2,8 min	β^- 1,6; γ 0,191; 0,392; 0,57; ...;
	^{190m}Re				2,8 h	β^- 1,6; γ 0,12—0,82;
	^{191}Re		190,9629		9,8 min	β^- 1,8;
	^{192}Re				6 s	β^- 2,5; γ 0,20—0,57;
76	^{181}Os		180,9528		23 min	K; e^-;
	^{181}Os				2,7 h	K; γ 0,23;
	^{182}Os		181,9528	0+	22 h	K; kein β^+; γ 0,510; 0,180; 0,263; ...; e^-;
	^{183}Os		182,9538	(9/2+)	12 h	K; γ 0,382; 0,114; 0,168; ...; e^-;
	^{183m}Os		182,9538	(1/2–)	9,9 h	K; γ 1,105; 1,035; ...; I.U. 0,1707; e^-;
	^{184}Os	0,018	183,9527	0+		
	^{185}Os		184,95411	1/2–	94 d	K; kein β^+; γ 0,646; 0,875; ...; e^-;
	^{186}Os	1,59	185,9538	0+		
	^{187}Os	1,64	186,95583	1/2–		
	^{188}Os	13,3	187,95608	0–		
	^{189}Os	16,1	188,9583	3/2–		
	^{189m}Os		188,9583	9/2–	5,7 h	I.U. 0,0308; e^-;
	^{190}Os	26,4	189,9587	0–		
	^{190m}Os		189,9605	(10)–	9,9 min	I.U. 0,616; 0,502; 0,361; ...; γ; e^-;
	^{191}Os		190,9610	(9/2–)	15 d	β^- 0,143; ...; γ 0,129; ...; e^-;
	^{191m}Os		190,9610	(3/2–)	13 h	I.U. 0,0742; e^-;
	^{192}Os	41,0	191,9614	0+		
	^{193}Os		192,96423		31 h	β^- 1,13; 1,059; 0,67; ...; γ 0,460; 0,139; 0,558; ...; e^-;

	^{194}Os		193,96523	0+	6,0 a	β^- 0,053; 0,096; ...; γ 0,043; ...; e^-;
	^{195}Os		194,9680		6,5 min	β^- 2;
77	^{182}Ir		181,9581		15 min	K; β^+; γ 0,133; 0,278—$\approx$ 4;
	^{183}Ir				0,9 h	K; γ 0,24;
	^{184}Ir		183,9571		3,2 h	K; β^+; γ 0,267; 0,125; 0,392; ...;
	^{185}Ir		184,9571		14 h	K; γ 0,101; 0,254; ...; e^-;
	^{186}Ir		185,9580		16 h	K; β^+ 1,94; ...; γ 0,297; 0,137; 0,434; ...; e^-;
	^{186}Ir				1,7 h	β^+ 1,93; 2,6; 1,30; ...; K; γ 0,137—0,99; e^-;
	^{187}Ir		186,9576*)	(3/2+)	10,5 h	K; γ 0,41; 0,98; 0,61; ...; e^-;
	^{188}Ir		187,95912	(2–)	41 h	K; γ0,155; 0,633; 2,08; ...; e^-; (β^+);
	^{189}Ir		188,9589	(3/2+)	13,3 d	K; γ 0,245; ...; e^-;
	^{190}Ir		189,9608	(4+)	11 d	K; kein β^+; γ 0,56; 0,187; 0,604; ...; e^-;
	$^{190m_1}Ir$		189,9608	(7+)	1,2 h	I.U. 0,0263; γ; e^-;
	$^{190m_2}Ir$		189,9610	(11–)	3,2 h	K; γ 0,616; 0,502; 0,361; I.U. 0,1487; e^-;
	^{191}Ir	38,5	190,9606	3/2+		
	^{191m}Ir		190,9608	11/2–	4,9 s	I.U. 0,0418; 0,129; ...; γ; e^-;
	^{192}Ir		191,9627	4(–)	74,2 d	β^- 0,67; 0,53; 0,24; ...; γ 0,317; 0,468; 0,308; ...; K; (β^+);
	$^{192m_1}Ir$		191,9627	1(+)	1,4 min	I.U. 0,058; (γ); e^-; (β^-); (γ);
	$^{192m_2}Ir$		191,9629	9(+)	> 5 a	I.U. 0,161; e^-;
	^{193}Ir	61,5	192,96301	3/2+		
	^{193m}Ir		192,96310	11/2–	12 d	I.U. 0,082; e^-;
	^{194}Ir		193,96512	1–	17,4 h	β^- 2,24; 1,92; 0,98; ...; γ 0,328; 0,64; ...;
	^{195}Ir		194,9659		4,2 h	β^- 1,0; 0,6; γ 0,10; 0,33; 0,13; ...;
	^{196}Ir		195,96862		2 h	β^- 0,95; γ 0,65; 0,522; 0,44; ...;
	^{197}Ir		196,9695		7 min	β^- 1,5; 2,0; γ 0,50;
	^{198}Ir		197,9726		50 s	β^- 3,6; γ 0,78;

Ordnungs-zahl Z	Symbol	Häufigkeit	Nuklidmasse	Kernspin und Parität	Halbwert-zeit $t_{1/2}$	Zerfallsart und Energie der Strahlung
78	^{180}Pt				50 s	K; β^+; (α 5,14);
	^{181}Pt				51 s	K; β^+; (α 5,02);
	^{182}Pt		181,9614	0+	3,0 min	K; β^+; (α 4,84);
	^{183}Pt				7 min	K; β^+; (α 4,73);
	^{184}Pt			0+	20 min	K; β^+; (α 4,50);
	^{184}Pt				42 min	K; γ 0,68; 1,72; 1,85;
	^{185}Pt				1,2 h	K; γ 0,035; 0,63; 1,56;
	^{186}Pt			0+	3 h	K; γ 0,67; 0,14; 1,40; ...; (α 4,23);
	^{187}Pt				2 h	K; γ 2,0; 0,11; 0,18;
	^{188}Pt		187,9597	0+	10,2 d	K; γ 0,19; 0,140; 0,38; ...; e^-; (α 3,93);
	^{189}Pt		188,9606*)		10,9 h	K; γ 0,56; 0,61; 0,187; ...; e^-;
	^{190}Pt	0,0127	189,9599	0+	$6 \cdot 10^{11}$ a	α 3,18;
	^{191}Pt		190,9614*)	(3/2–)	3,0 d	K; γ 0,539; 0,410; 0,129; e^-;
	^{192}Pt	0,78	191,9611	0+	$\lessapprox 10^{15}$ a	α 2,6?
	^{193}Pt		192,96306		< 500 a	K; kein β^-; kein β^+;
	^{193m}Pt		192,96322		4,3 d	I.U. 0,0126; 0,1355; (γ); e^-;
	^{194}Pt	32,9	193,96273	0+		
	^{195}Pt	33,8	194,96481	1/2–		
	^{195m}Pt		194,97509	13/2+	4,1 d	I.U. 0,031; 0,099; 0,129; γ; e^-;
	^{196}Pt	25,2	195,96497	0+		
	^{197}Pt		196,96735	(1/2–)	18 h	β^- 0,670; 0,479; 0,468; γ 0,077; 0,192; 0,269; e^-;
	^{197m}Pt		196,96777	(13/2+)	80 min	I.U. 0,346; 0,053; γ; e^-; β^- 0,737;
	^{198}Pt	7,19	197,96789	0+		
	^{199}Pt		198,97058		30 min	β^- 1,69; 0,88; 1,14; ...; γ 0,540; 0,197; 0,32; ...;
	^{199m}Pt		198,97104		14,1 s	I.U. 0,393; 0,032; γ; e^-;
	^{200}Pt		199,9714*)	0+	11,5 h	β^-;
	^{201}Pt		200,9748		2,5 min	β^- 2,66; γ 0,15; 0,23; 1,76;

79	^{185}Au				7 min	K;
	^{185}Au				4,3 min	K; β^+; (α 5,07);
	^{186}Au				12 min	K; γ 0,16; 0,22; 0,30; 0,40; ...;
	^{187}Au				8 min	K;
	^{188}Au				8 min	K; β^+; γ 0,25; 0,33; 0,63;
	^{189}Au				30 min	K; γ 0,0457; 0,0886; 0,440; ...; e^-;
	^{190}Au		189,9647*)	1–	39 min	K; β^+; γ 0,29; 0,60; ...; e^-;
	^{191}Au		190,9635*)	3/2+	3,2 h	K; γ 0,30; 0,60; 0,14; ...; e^-;
	^{192}Au		191,9646	1(–)	4,1 h	K; β^+ 2,2; γ 0,1—1,2; e^-;
	^{193}Au		192,9646	3/2+	16 h	K; kein β^+; γ 0,18; 0,26; 0,114; ...; e^-;
	^{193m}Au		192,9646	11/2–	3,9 s	I.U. 0,032; 0,258; γ; e^-; (K);
	^{194}Au		193,96542	1–	39,5 h	K; β^+ 1,49; 1,21; γ 0,328; 0,294; 1,469; ...; e^-;
	^{195}Au		194,96505	3/2+	183 d	K; γ 0,099; 0,129; e^-;
	^{195m}Au		194,96539	11/2–	31 s	I.U. 0,261; 0,0567; 0,318; γ; e^-;
	^{196}Au		195,96655	2–	6,18 d	K; (β^+); γ 0,356; 0,333; ...; β^- 0,259; γ 0,426; e^-;
	^{196m}Au		195,96719	12(–)	9,7 h	I.U. 0,148; 0,188; 0,285; ...; γ; e^-;
	^{197}Au	100	196,96654	3/2+		
	^{197m}Au		196,96698	11/2–	7,2 s	I.U. 0,279; 0,130; γ; e^-;
	^{198}Au		197,96823	2–	2,698 d	β^- 0,962; 0,29; 1,371; γ 0,412; 0,676; ...; e^-;
	^{199}Au		198,96877	3/2+	3,15 d	β^- 0,30; 0,25; 0,46; γ 0,158; 0,208; e^-;
	^{200}Au		199,9707	(0, 1–)	48,4 min	β^- 2,2; 0,7; 1,8; γ 0,368; 1,227; 1,593;
	^{201}Au		200,9719		26 min	β^- 1,5; γ 0,53;
	^{203}Au		202,9751*)		55 s	β^- 1,9; γ 0,69;
80	^{185}Hg				50 s	K;
	^{186}Hg			0+	1,5 min	K; γ 0,125; 0,35; 0,44; ...;
	^{187}Hg				3 min	K; γ 0,175; 0,255; 0,40; α?
	^{188}Hg			0+	3,7 min	K; γ 0,14; α 5,14;
	^{189}Hg				10 min	K; γ 0,165; 0,24; 0,32; ...; β^+?
	^{190}Hg		189,9667	0+	20 min	K; γ 0,14; 0,22; ...; e^-;
	^{191}Hg				55 min	K; γ 0,26; e^-;

Ordnungs-zahl Z	Symbol	Häufigkeit	Nuklidmasse	Kernspin und Parität	Halbwert-zeit $t_{1/2}$	Zerfallsart und Energie der Strahlung
	^{192}Hg		191,9662*)	0+	4,8 h	K; γ 0,274; 0,157; 0,114; e^-; (β^+);
	^{193}Hg		192,9667*)	3/2–	6 h	K; γ 0,187; 0,574; 0,762; ...; e^-;
	^{193m}Hg		192,9667	13/2+	10 h	K; β^+ 1,17; γ 0,218; 0,574; ...; I.U. 0,1015; 0,0395; (γ); e^-;
	^{194}Hg		193,9654	0+	1,9 a(?)	K; kein γ;
	^{194m}Hg				0,4 s	I.U. oder K; γ 0,048; 0,134;
	^{195}Hg		194,9666*)	1/2–	9,5 h	K; γ 0,261; 0,59; 0,780; ...; e^-;
	^{195m}Hg		194,9667	13/2+	40 h	I.U. 0,1230; 0,0533; 0,0372; e^-; K; γ 0,200; 0,261; 0,560; e^-;
	^{196}Hg	0,146	195,96582	0+		
	^{197}Hg		196,96700	1/2–	65 h	K; γ 0,077; 0,268; 0,191; e^-;
	^{197m}Hg		196,96731	13/2+	24 h	I.U. 0,134; 0,165; γ; e^-; K;
	^{198}Hg	10,02	197,96676	0+		
	^{199}Hg	16,84	198,96828	1/2–		
	^{199m}Hg		198,96886	13/2+	43 min	I.U. 0,158; 0,375; γ; e^-;
	^{200}Hg	23,13	199,96833	0+		
	^{201}Hg	13,22	200,97031	3/2–		
	^{202}Hg	29,80	201,97064	0+		
	^{203}Hg		202,97288	(5/2, 3/2)–	46,9 d	β^- 0,214; ...; γ 0,279; e^-;
	^{204}Hg	6,85	203,97349	0+		
	^{205}Hg		204,9762	(1/2–)	5,5 min	β^- 1,7; γ 0,205;
	^{206}Hg		205,97751	0+	8 min	β^- 1,3; γ 0,31;
81	^{191}Tl				10 min	K; β^+;
	^{192}Tl				11 min	K; β^+; γ 0,424; e^-;
	^{193}Tl			(1/2+)	23 min	K; β^+; γ 0,158—0,247; e^-;
	^{193m}Tl			(9/2+)	2,1 min	I.U. 0,365; γ; e^-;
	^{194}Tl		193,9716*)		33 min	K; γ 0,427; e^-;

Z	Nuklid	Häufigkeit	Masse	Spin	Halbwertszeit	Zerfall
	^{194m}Tl				32,8 min	K; γ 0,097; e^-; keine I.U.;
	^{195}Tl		194,9699	1/2+	1,2 h	K; β^+ 1,8; γ 0,0372—0,883; e^-;
	^{195m}Tl		194,9699	(9/2–)	3,5 s	I.U. 0,099; 0,383; γ; e^-;
	^{196}Tl		195,9708	(2–)	1,84 h	K; γ 0,426; e^-;
	^{196m}Tl		195,9712	(7+)	1,41 h	K; γ 0,084; 0,426; I.U. 0,120; 0,275; 0,0337; ...; e^-;
	^{197}Tl		196,9694	1/2+	2,8 h	K; γ 0,152; 0,426; ...; e^-;
	^{197m}Tl		196,9700	(9/2–)	0,54 s	I.U. 0,385; 0,222; γ; e^-;
	^{198}Tl		197,9705	2–	5,3 h	K; (β^+); γ 0,412; 0,65; 1,42; ...; e^-;
	^{198m}Tl		197,9710	7+	1,87 h	I.U. 0,2609; 0,283; 0,0231; ...; e^-; K; γ 0,412; 0,586; 0,635;
	^{199}Tl		198,9695	1/2+	7,4 h	K; kein β^+; γ 0,455; 0,208; 0,247; ...; e^-;
	^{200}Tl		199,97096	2–	26,1 h	K; (β^+); γ 0,368; 1,21; 0,579; e^-;
	^{201}Tl		200,9707	1/2+	73 h	K; γ 0,167; 0,135; ...; e^-;
	^{202}Tl		201,97195	2–	12,0 d	K; γ 0,439; ...; e^-; kein β^+; β^-;
	^{203}Tl	29,50	202,97235	1/2+		
	^{204}Tl		203,97387	2–	3,8 a	β^- 0,766; K;
	^{205}Tl	70,50	204,97444	1/2+		
	^{206}Tl		205,97610	(0–)	4,19 min	β^- 1,52; kein γ;
	^{207}Tl		206,97745	(1/2+)	4,79 min	β^- 1,44; ...; (γ);
	^{207m}Tl		206,97888	(11/2–)	1,3 s	I.U. 0,35; 1,00; γ;
	^{208}Tl		207,98201	(5+)	3,10 min	β^- 1,80; 1,29; 1,52; ...; γ 2,614; 0,583; 0,511; ...; e^-;
	^{209}Tl		208,98535	(1/2+)	2,2 min	β^- 1,99; γ 0,45; 1,56; 0,12; e^-;
	^{210}Tl		209,99009		1,3 min	β^- 1,9; 1,3; 2,3; γ 0,795; 0,296; 1,31; ...; e^-;
82	^{194}Pb			0+	11 min	K; γ 0,204;
	^{195}Pb				17 min	K; γ 0,39; e^-;
	^{196}Pb		195,9738*)	0+	37 min	K; γ 0,192—0,503; e^-;
	^{197}Pb		196,9742*)	(3/2–)		K; γ 0,386;
	^{197m}Pb		196,9742	(13/2+)	42 min	K; γ 0,222; 0,386; e^-; I.U. 0,085; 0,234; γ; e^-;

Ordnungszahl Z	Symbol	Häufigkeit	Nuklidmasse	Kernspin und Parität	Halbwertzeit $t_{1/2}$	Zerfallsart und Energie der Strahlung
	^{198}Pb		197,9724*)	0+	2,4 h	K; γ 0,38; 0,173; 0,290; e^-;
	^{199}Pb		198,9732*)	(5/2–)	90 min	K; γ 0,367; 0,353; 0,720; e^-; (β^+);
	^{199m}Pb		198,9732	(13/2+)	12,2 min	I.U. 0,424; γ (20%); e^-;
	^{200}Pb		199,9720*)	0+	21,5 h	K; γ 0,109—0,605; e^-;
	^{201}Pb		200,9732*)		9,4 h	K; γ 0,330—1,40; e^-; (β^+ 0,55);
	^{201m}Pb		200,9732		61 s	I.U. 0,629; γ (51%); e^-;
	^{202}Pb		201,97200	0+	$\approx 3 \cdot 10^5$ a	K;
	^{202m}Pb		201,97433	9–	3,62 h	I.U. 0,422; 0,961; 0,787; ...; γ; K; γ 0,490; 0,460; 0,390; ...; e^-;
	^{203}Pb		202,97323	(5/2–)	52,1 h	K; γ 0,279; 0,401; ...; e^-;
	^{203m}Pb		202,97412	(13/2+)	6,1 s	I.U. 0,825; γ (70%); e^-;
	^{204}Pb	1,40	203,97304	0+		
	^{204m}Pb		203,97539	9–	66,9 min	I.U. 0,90; 0,375; 0,289; γ; e^-;
	^{205}Pb		204,97448	(5/2–)	$3 \cdot 10^7$ a	K;
	^{206}Pb	25,1	205,97447	0+		
	^{207}Pb	21,7	206,97590	1/2–		
	^{207m}Pb		206,97766	13/2+	0,80 s	I.U. 0,570; 1,064; γ; e^-;
	^{208}Pb	52,3	207,97665	0+		
	^{209}Pb		208,98107	(9/2+)	3,30 h	β^- 0,635; kein γ;
	^{210}Pb		209,98419	0+	21 a	β^- 0,015; 0,061; γ 0,047; e^-; (α 3,72);
	^{211}Pb		210,98874	(9/2+)	36,1 min	β^- 1,36; 0,53; 0,95; ...; γ 0,405; 0,832; 0,427; ...;
	^{212}Pb		211,99190	0+	10,64 h	β^- 0,355; 0,58; 0,16; γ 0,239; 0,300; ...; e^-;
	^{213}Pb		212,9963*)		10 min	β^- 1,8;
	^{214}Pb		213,99984	0+	26,8 min	β^- 0,67; 0,74; 1,03; ...; γ 0,352; 0,295; 0,242; ...; e^-;
83	$^{197?}Bi$				7 min	K; (α 5,81);
	^{199}Bi		198,9785*)	9/2	24 min	K; (α 5,53);

Z	Nuklid	Häufigkeit	Masse	Spin	Halbwertszeit	Zerfall
	^{200}Bi		199,9790*)	7	35 min	K;
	^{201}Bi		200,9774*)	9/2–	1,8 h	K;
	^{201m}Bi				52 min	K; (α 5,28);
	^{202}Bi		201,9779*)	5	95 min	K; γ 0,422; 0,961;
	^{203}Bi		202,9766	9/2–	11,8 h	K; β^+ 1,35; 0,74; γ 1,87; 1,034; ...; e^-; (α);
	^{204}Bi		203,9778*)	6+	11,2 h	K; kein β^+; γ 0,08—1,21; e^-;
	^{205}Bi		204,97738	9/2–	15,3 d	K; (β^+); γ 0,703; 1,766; 0,988; ...; e^-;
	^{206}Bi		205,97834	6+	6,24 d	K; (β^+); γ 0,803; 0,880; 0,516; ...; e^-;
	^{207}Bi		206,97849	(9/2–)	30 a	K; γ 0,570; 1,063; 1,771; ...; e^-;
	^{208}Bi		207,97973	(5+)	$3{,}7 \cdot 10^5$ a	K; kein β^+; γ 2,614;
	^{209}Bi	100	208,98040	9/2–	$> 2 \cdot 10^{18}$ a	(α ? 3,0);
	^{210}Bi		209,98412	1–	5,01 d	β^- 1,160; (α);
	^{210m}Bi		209,98441		$3 \cdot 10^6$ a	α 4,96; 4,92; 4,57; γ 0,262; 0,30; 0,34; ...; (β^-);
	^{211}Bi		210,98729	(9/2–)	2,15 min	(α 6,62; 6,28; ...; γ 0,351; e^-; (β^-);
	^{212}Bi		211,99127	1(–)	60,6 min	β^- 2,25; 1,55; 0,67; ...; α 6,05; 6,09; ...; γ 0,727; 0,040; 1,620; ...; e^-;
	^{213}Bi		212,99437		47 min	β^- 1,39; 0,96; γ 0,437; α 5,87; ...;
	^{214}Bi		213,99872	(1–)	19,7 min	β^- 1,51; 1,0; 3,26; ...; γ 0,609; 1,120; 1,764; ...; (α);
	^{215}Bi		215,0018		7 min	β^- 2,2;
84	^{193}Po				kurz	α 7,0;
	^{194}Po			0+	0,5 s	α 6,85;
	^{195}Po				3 s	α 6,63;
	^{195m}Po				1,4 s	α 6,72;
	^{196}Po			0+	6 s	α 6,53;
	^{197}Po				54 s	α 6,30;
	^{197m}Po				25 s	α 6,39;
	^{198}Po			0+	1,7 min	α 6,16;
	^{199}Po				5,0 min	K; α 5,94;
	^{199m}Po				4,2 min	K; α 6,05;

Ordnungs-zahl Z	Symbol	Häufigkeit	Nuklidmasse	Kernspin und Parität	Halbwert-zeit $t_{1/2}$	Zerfallsart und Energie der Strahlung
	^{200}Po		199,9828*)	0+	11 min	K; α 5,86;
	^{201}Po		200,9830*)	3/2	15,1 min	K; α 5,68;
	^{201m}Po				9 min	K; α 5,78;
	^{202}Po		201,9811*)	0+	45 min	K; α 5,58;
	^{203}Po		202,9815*)	5/2(−)	42 min	K; (α 5,49);
	^{204}Po		203,9805*)	0+	3,6 h	K; (α 5,38);
	^{205}Po		204,9812*)	5/2−	1,8 h	K; (α 5,25);
	^{206}Po		205,98032	0+	8,8 d	K; kein β^+; γ 0,51; 1,02; 0,807; ...; e^-; α 5,22;
	^{207}Po		206,98160	5/2−	5,7 h	K; (β^+); γ 0,95; 0,74; 0,41; ...; e^-; (α 5,11);
	^{207m}Po		206,98309		2,8 s	I.U. 0,82; 0,26; 0,31; γ; e^-;
	^{208}Po		207,98124	0+	2,93 a	α 5,11; (K); (γ);
	^{209}Po		208,98243	1/2	103 a	α 4,88; (K); (γ); e^-;
	^{210}Po		209,98288	0+	138,4 d	α 5,305; (γ);
	^{211}Po		210,98666	(9/2+)	0,52 s	α 7,45; (γ);
	^{211m}Po		210,98819	(25/2+)	25 s	α 7,28; 8,88; γ 0,570; 1,063; e^-;
	^{212}Po		211,98886	0+	304 ns	α 8,78; ...;
	^{212m}Po		211,99201	(18+)	45 s	α 11,65; γ 2,61; 0,57; keine I.U.;
	^{213}Po		212,99285	(9/2+)	4,2 μs	α 8,38;
	^{214}Po		213,99520	0+	164 μs	α 7,69; ...; (γ);
	^{215}Po		214,99944	(9/2+)	1,78 ms	α 7,38; ...; (β^-);
	^{216}Po		216,00192	0+	0,15 s	α 6,78; ...;
	^{217}Po		217,0061*)		< 10 s	α 6,55;
	^{218}Po		218,00899	0+	3,05 min	α 6,00; ...; (β^-);
85	^{200}At				0,9 min	α 6,47; 6,42; (K);
	^{201}At				1,5 min	α 6,35; K;
	^{202}At		201,9898*)		3,0 min	K; α 6,12; 6,23;
	^{203}At		202,9877*)		7,4 min	K; α 6,09;

Z	Nuklid	Masse	Spin	Halbwertszeit	Zerfall
	^{204}At	203,988 1*)		9,3 min	K; α 5,92;
	^{205}At	204,986 4*)		26 min	K; α 5,90;
	^{206}At	205,986 8*)		32 min	α 5,70; γ 0,068; e^-; K;
	^{207}At	206,985 60		1,8 h	K; α 5,76;
	^{208}At	207,987 0*)		1,6 h	K; γ 0,66; 0,25; 0,18; (α);
	^{209}At	208,986 17	(9/2–)	5,5 h	K; γ 0,780; 0,545; 0,195; e^-; α 5,65;
	^{210}At	209,986 99	(5+)	8,3 h	K; γ 1,180; 0,245; 1,483; . . .; e^-; (α);
	^{211}At	210,987 50	9/2(–)	7,21 h	K; α 5,868; γ 0,67;
	^{212}At	211,990 72		0,30 s	α 7,66; 7,60; γ 0,063 ?; e^-;
	^{212m}At	211,990 96		0,12 s	α 7,82; 7,88; γ 0,063; e^-; keine I.U.;
	^{213}At	212,993 0		kurz	α 9,2;
	^{214}At	213,996 32		≲ 2 μs	α 8,78;
	^{215}At	214,998 66		≲ 100 μs	α 8,01;
	^{216}At	216,002 41	(1–)	≲ 300 μs	α 7,80;
	^{217}At	217,004 70		0,032 s	α 7,07;
	^{218}At	218,008 71		≲ 2 s	α 6,70; 6,65; (β^-);
	^{219}At	219,011 3		0,9 min	α 6,28; β^-;
86	^{204}Rn	203,992 3*)	0+	75 s	α 6,42;
	^{205}Rn	204,992 6*)		1,8 min	α 6,26;
	^{206}Rn	205,990 6*)	0+	6,5 min	α 6,26; K;
	^{207}Rn	206,990 7*)		11 min	K; α 6,15;
	^{208}Rn	207,989 8*)	0+	23 min	K; α 6,15;
	^{209}Rn	208,990 4*)		30 min	K; α 6,04;
	^{210}Rn	209,989 54	0+	2,42 h	α 6,04; K;
	^{211}Rn	210,990 60	(1/2–)	15 h	K; γ 0,680; 1,37; 0,445; . . .; α 5,78; 5,85; γ 0,069; e^-;
	^{212}Rn	211,990 73	0+	25 min	α 6,27;
	^{215}Rn	214,998 7		≲ 1 μs	α 8,6;
	^{216}Rn	216,000 27	0+	45 μs	α 8,05;
	^{217}Rn	217,003 92	(9/2+)	540 μs	α 7,24;
	^{218}Rn	218,005 60	0+	0,035 s	α 7,14; . . .; (γ);

Ordnungs-zahl Z	Symbol	Häufigkeit	Nuklidmasse	Kernspin und Parität	Halbwert-zeit $t_{1/2}$	Zerfallsart und Energie der Strahlung
	^{219}Rn		219,009 50		4,0 s	α 6,82; 6,55; 6,42; γ 0,272; 0,401; e^-;
	^{220}Rn		220,011 39	0+	55 s	α 6,29; ...; (γ);
	^{221}Rn		221,015 2*)		25 min	β^-; α 6,0;
	^{222}Rn		222,017 60	0+	3,823 d	α 5,49; ...; (γ);
87	^{209}Fr		208,997		55 s	α 6,66;
	^{210}Fr		209,997		2,6 min	α 6,56;
	^{211}Fr		210,995 3		3,1 min	α 6,56;
	^{212}Fr		211,996 2*)		19 min	K; α 6,39; 6,42; 6,35;
	^{213}Fr		212,996 18		34 s	α 6,78; (K);
	^{218}Fr		218,007 51		5 ms	α 7,85; 7,55; 7,52; ...;
	^{219}Fr		219,009 24		20 ms	α 7,31;
	^{220}Fr		220,012 31		27,5 s	α 6,68; 6,64; 6,58; ...;
	^{221}Fr		221,014 25		4,8 min	α 6,34; 6,12; 6,24; ...; γ 0,218; e^-;
	^{222}Fr		222,017 54		14,8 min	β^-; (α);
	^{223}Fr		223,019 75	(3/2+)	22 min	β^- 1,15; γ 0,050; 0,080; 0,234; e^-; (α);
88	^{213}Ra		213,000 0*)		2,7 min	α 6,91;
	^{219}Ra		219,010 1		$\lessapprox 10^{-3}$ s	α 8,0;
	^{220}Ra		220,011 03	0+	23 ms	α 7,46; ...; γ 0,465;
	^{221}Ra		221,013 91		30 s	α 6,61; 6,76; 6,67; ...; γ 0,151; 0,091; 0,175;
	^{222}Ra		222,015 37	0+	38 s	α 6,56; γ 0,325; ...;
	^{223}Ra		223,018 53	1/2+	11,43 d	α 5,71; 5,61; 5,75; ...; γ 0,270; 0,149; 0,33; e^-;
	^{224}Ra		224,020 20	0+	3,64 d	α 5,68; 5,45; ...; γ 0,241; ...; e^-;
	^{225}Ra		225,023 63	(3/2–)	14,8 d	β^- 0,36; γ 0,040; e^-;
	^{226}Ra		226,025 43	0+	1 602 a	α 4,78; 4,60; ...; γ 0,186; ...; e^-;
	^{227}Ra		227,029 18		41,2 min	β^- 1,31; γ 0,291; ...; e^-;
	^{228}Ra		228,031 09	0+	6,7 a	β^- 0,05; e^-;

Z	Nuklid	Häufigkeit	Masse	Spin	Halbwertszeit	Zerfall
	^{230}Ra		230,0376		1 h	β^- 1,2;
89	^{222}Ac		222,01777		5 s	α 7,00; 6,95;
	^{223}Ac		223,01913	(5/2–)	2,2 min	α 6,65; 6,66; 6,57; (γ); K;
	^{224}Ac		224,02170		2,9 h	K; γ 0,217; 0,132; e$^-$; α 6,20; 6,14; 6,04;
	^{225}Ac		225,02321	(3/2+)	10,0 d	α 5,83; 5,79; 5,73; ...; γ 0,099; 0,150; 0,187; e$^-$;
	^{226}Ac		226,02610		29 h	β^- 1,2; γ 0,230; 0,158; e$^-$; K; γ 0,253; 0,185; ...; (α?);
	^{227}Ac		227,02777	3/2+	21,6 a	β^- 0,046; e$^-$; (γ); α 4,95; ...;
	^{228}Ac		228,03104		6,13 h	β^- 1,11; 1,7; 2,11; ...; γ 0,908; 0,96; 0,34; e$^-$;
	^{229}Ac		229,0328*)		66 min	β^-;
	^{230}Ac		230,0362*)		< 1 min	β^- 2,2;
	^{231}Ac		231,0385		15 min	β^- 2,1; γ 0,185; 0,28; 0,71; ...;
90	^{223}Th		223,0209		0,9 s	α 7,56;
	^{224}Th		224,02147	0+	1,05 s	α 7,18; 6,91; γ 0,177; ...;
	^{225}Th		225,02394	(3/2+)	8,0 min	α 6,48; 6,44; 6,50; ...; γ 0,322; 0,362; 0,246; ...; K;
	^{226}Th		226,02490	0+	30,9 min	α 6,34; 6,22; 6,11; γ 0,111; 0,242; ...; e$^-$;
	^{227}Th		227,02772	3/2+	18,2 d	α 5,98; 6,04; 5,76; ...; γ 0,237; 0,31; 0,050; e$^-$;
	^{228}Th		228,02874	0+	1,910 a	α 5,43; 5,34; ...; γ 0,084; ...; e$^-$;
	^{229}Th		229,03179	5/2+	7340 a	α 4,84; 4,81; 4,90; ...; γ 0,20; 0,137; e$^-$;
	^{230}Th		230,03314	0+	$8{,}0 \cdot 10^4$ a (Sp ≥ $1{,}5 \cdot 10^{17}$ a)	α 4,68; 4,62; ...; e$^-$; (γ);
	^{231}Th		231,03632	(5/2+)	25,5 h	β^- 0,30; 0,218; 0,134; ...; γ 0,084; 0,026; e$^-$;
	^{232}Th	100	232,03808	0+	$1{,}41 \cdot 10^{10}$ a (Sp > 10^{21} a)	α 4,01; 3,95; ...; γ 0,059; e$^-$;

Ordnungs-zahl Z	Symbol	Häufigkeit	Nuklidmasse	Kernspin und Parität	Halbwert-zeit $t_{1/2}$	Zerfallsart und Energie der Strahlung
	^{233}Th		233,04147		22,2 min	β^- 1,23; ...; γ 0,087; 0,029; 0,453; ...; e^-;
	^{234}Th		234,04362	0+	24,1 d	β^- 0,191; 0,100; γ 0,063; 0,093; e^-;
91	^{226}Pa		226,02787		1,8 min	α 6,86; 6,82; 6,72; K;
	^{227}Pa		227,02880	(5/2–)	38,3 min	α 6,47; 6,42; 6,40; ...; γ 0,065; 0,110; K;
	^{228}Pa		228,03098	(3+)	22 h	K; γ 0,95; 0,46; 0,33; ...; e^-; α 6,11; ...;
	^{229}Pa		229,03208	(5/2–)	1,5 d	K; (γ); e^-; (α);
	^{230}Pa		230,03454	(2–)	17,7 d	K; γ 0,954; 0,91; 0,45; ...; e^-; β^- 0,41; (α);
	^{231}Pa		231,03590	3/2–	$3{,}25 \cdot 10^4$ a	α 5,01; 5,02; 4,95; ...; γ 0,027; 0,29; e^-;
	^{232}Pa		232,03859		1,31 d	β^- 0,32; ...; γ 0,87; 0,971; 0,150; ...; e^-;
	^{233}Pa		233,04027	3/2–	27,0 d	β^- 0,257; 0,15; 0,568; γ 0,31; 0,09; ...; e^-;
	^{234}Pa		234,04335	(4+)	6,75 h	β^- 0,53; 1,13; 0,23; ...; γ 0,90; 0,100; 0,126; ...; e^-;
	^{234m}Pa		234,04343	(0–)	1,17 min	β^- 2,29; ...; (γ); (I.U.);
	^{235}Pa		235,0454		23,7 min	β^- 1,4; kein γ;
	^{236}Pa		236,0483		12 min	β^- 3,3; γ;
	^{237}Pa		237,0512		39 min	β^- 2,3; 1,3; 0,8; γ 0,46; 0,87; 0,92; ...;
92	^{227}U		227,0311		1,3 min	α 6,8;
	^{228}U		228,03138	0+	9,1 min	α 6,69; 6,60; (γ); K;
	^{229}U		229,03350	(3/2+)	58 min	K; γ; α 6,36; 6,33; 6,30;
	^{230}U		230,03393	0+	20,8 d	α 5,89; 5,82; ...; (γ); e^-;
	^{231}U		231,0363	(5/2–)	4,3 d	K; γ 0,026; 0,084; 0,218; e^-; (α);
	^{232}U		232,03717	0+	72 a (Sp $\approx 8 \cdot 10^{13}$ a)	α 5,32; 5,27; ...; (γ); e^-;
	^{233}U		233,03952	5/2+	$1{,}62 \cdot 10^5$ a	α 4,82; 4,78; 4,72; ...; γ 0,042; 0,097; 0,029; ...; e^-;
	^{234}U	0,0057	234,04090	0+	$2{,}47 \cdot 10^5$ a (Sp $2 \cdot 10^{16}$ a)	α 4,77; 4,72; (γ);

	^{235}U	0,7196	235,04394	7/2–	$7{,}1 \cdot 10^{8}$ a (Sp $1{,}9 \cdot 10^{17}$ a)	α 4,40; 4,37; 4,58; ...; γ 0,185; 0,143; 0,204; ...;
	^{235m}U		235,04394	1/2+	26,1 min	I.U. 0,00008; e^-;
	^{236}U		236,04558	0+	$2{,}39 \cdot 10^{7}$ a (Sp $2 \cdot 10^{16}$ a)	α 4,49; 4,44; ...; γ 0,05; e^-;
	^{237}U		237,04875	1/2+	6,75 d	β^- 0,248; 0,09; ...; γ 0,060; 0,208; 0,165; ...; e^-;
	^{238}U	99,276	238,0508	0+	$4{,}51 \cdot 10^{9}$ a (Sp $6{,}5 \cdot 10^{15}$ a)	α 4,20; 4,15; ...; γ 0,048; e^-;
	^{239}U		239,0543	(5/2+)	23,5 min	β^- 1,29; γ 0,075; 0,044; e^-;
	^{240}U		240,05662	0+	14,1 h	β^- 0,36; γ 0,044; e^-;
93	^{231}Np		231,0383		≈ 50 min	α 6,29;
	^{232}Np		232,0399*)		≈ 13 min	K; γ;
	^{233}Np		233,0407		35 min	K; γ; (α 5,54);
	^{234}Np		234,0429	(0+)	4,40 d	K; γ 0,043—1,606; e^-; (β^+);
	^{235}Np		235,04407	5/2+	410 d	K; (γ); (α);
	^{236}Np		236,0466		$> 5 \cdot 10^{3}$ a	β^- ?;
	^{236m}Np		236,04660	(1–)	22 h	K; γ 0,642; 0,688; β^- 0,52; 0,36; γ 0,04; e^-;
	^{237}Np		237,04819	5/2+	$2{,}14 \cdot 10^{6}$ a (Sp $> 10^{18}$ a)	α 4,78; 4,65; ...; γ 0,030; 0,086; 0,145; e^-;
	^{238}Np		238,05096	2(+)	2,1 d	β^- 1,25; 0,25; 0,28; ...; γ 1,01; ...; e^-;
	^{239}Np		239,05295	5/2+	2,35 d	β^- 0,437; 0,332; 0,393; ...; γ 0,106; 0,278; 0,228; ...; e^-;
	^{240}Np		240,0560		63 min	β^- 0,89; γ 0,16—1,16;
	^{240m}Np		240,0561	1(–)	7,3 min	β^- 2,16; 1,60; 1,30; ...; γ 0,56; 0,60; 0,92; ...; e^-;
	^{241}Np		241,0583		16 min	β^- 1,4;
	^{241}Np				3,4 h	β^-;

Ordnungs-zahl Z	Symbol	Häufigkeit	Nuklidmasse	Kernspin und Parität	Halbwert-zeit $t_{1/2}$	Zerfallsart und Energie der Strahlung
94	^{232}Pu		232,0412	0+	36 min	K; α 6,59;
	^{233}Pu		233,04299		20 min	K; (α);
	^{234}Pu		234,04331	0+	9,0 h	K; α 6,20; 6,15; ...;
	^{235}Pu		235,0453		26 min	K; (α 5,86);
	^{236}Pu		236,04606	0+	2,85 a (Sp $3,5 \cdot 10^9$ a)	α 5,77; 5,72; ...; (γ); e^-;
	^{237}Pu		237,04844	(7/2–)	45,6 d	K; 0,060; e^-; (α);
	^{237m}Pu		237,04859	(1/2+)	0,18 s	I.U. 0,145; γ (2%); e^-;
	^{238}Pu		238,04958	0+	86 a (Sp $4,9 \cdot 10^{10}$ a)	α 5,50; 5,46; ...; (γ); e^-;
	^{239}Pu		239,05218	1/2+	$2,44 \cdot 10^4$ a (Sp $5,5 \cdot 10^{15}$ a)	α 5,16; 5,145; 5,11; ...; (γ); e^-;
	^{240}Pu		240,05383	0+	6580 a (Sp $1,34 \cdot 10^{11}$ a)	α 5,17; 5,12; ...; (γ); e^-;
	^{241}Pu		241,05688	5/2+	13,2 a	β^- 0,021; (α); (γ);
	^{242}Pu		242,05877	0+	$3,79 \cdot 10^5$ a (Sp $7,1 \cdot 10^{10}$ a)	α 4,90; 4,86; γ;
	^{243}Pu		243,06202	(7/2+)	4,98 h	β^- 0,58; 0,49; ...; γ 0,084; ...; e^-;
	^{244}Pu		244,06423	0+	$8 \cdot 10^7$ a (Sp $2,5 \cdot 10^{10}$ a)	α 4,58;
	^{245}Pu		245,0678*)		10 h	β^-;
	^{246}Pu		246,0701	0+	10,9 d	β^- 0,15; 0,33; γ 0,044; 0,224; 0,180; e^-;

95	^{237}Am	237,0505		≈ 1,3 h	K; (α 6,02);
	^{238}Am	238,0519*)		1,9 h	K; γ 0,98; 1,35; 0,58; . . .;
	^{239}Am	239,05304	(5/2–)	12,1 h	K; γ 0,228; 0,278; 0,209; e^-; (α 5,78);
	^{240}Am	240,0553*)		51 h	K; γ 1,00; 0,90; . . .; e^-;
	^{241}Am	241,05686	5/2–	458 a (Sp $2 \cdot 10^{14}$ a)	α 5,49; 5,44; . . .; γ 0,060; . . .; e^-;
	^{242}Am	242,05956	1(–)	16,0 h	β^- 0,662; 0,667; γ 0,042; e^-; K; γ 0,045;
	^{242m}Am	242,05960	5(–)	152 a	I.U. 0,049; (γ); e^-; (α);
	^{243}Am	243,06139	5/2–	7950 a	α 5,28; 5,23; 5,18; . . .; γ 0,075; 0,044; . . .; e^-;
	^{244}Am	244,06431	(6–)	10,1 h	β^- 0,387; γ 0,746; 0,900; 0,154; e^-;
	^{244m}Am	244,06443	(1–)	26 min	β^- 1,50; γ 0,0429; e^-; (K);
	^{245}Am	245,06649	(5/2+)	2,1 h	β^- 0,91; γ 0,253; e^-;
	^{246}Am	246,0697	(2+)	25,0 min	β^- 1,31; 1,60; 2,10; γ 1,07; 0,799;
96	^{238}Cm	238,05302	0+	2,5 h	K; α 6,51;
	^{239}Cm	239,0549*)		2,9 h	K; γ 0,188;
	^{240}Cm	240,05552	0+	26,8 d (Sp $7,9 \cdot 10^5$ a)	α 6,29; 6,25; . . .;
	^{241}Cm	241,05768	(1/2+)	35 d	K; γ 0,475; 0,60; e^-; α 5,94;
	^{242}Cm	242,05885	0+	163 d (Sp $7,2 \cdot 10^6$ a)	α 6,12; 6,07; . . .; (γ); e^-;
	^{243}Cm	243,06140	5/2+	32 a	α 5,79; 5,74; 5,99; . . .; γ 0,278; 0,228; 0,209; e^-; (K);
	^{244}Cm	244,06277	0+	17,6 a (Sp $1,31 \cdot 10^7$ a)	α 5,81; 5,77; . . .; (γ); e^-;
	^{245}Cm	245,06551	7/2+	$9,3 \cdot 10^3$ a	α 5,36; 5,31; . . .; γ 0,173; 0,13;
	^{246}Cm	246,06725	0+	$5,5 \cdot 10^3$ a (Sp $1,7 \cdot 10^7$ a)	α 5,39; 5,34; γ;

Ordnungs-zahl Z	Symbol	Häufigkeit	Nuklidmasse	Kernspin und Parität	Halbwert-zeit $t_{1/2}$	Zerfallsart und Energie der Strahlung
	^{247}Cm		247,07038		$1{,}6 \cdot 10^7$ a	α;
	^{248}Cm		248,07239	0+	$4{,}7 \cdot 10^5$ a (Sp $4{,}6 \cdot 10^6$ a)	α 5,08; 5,04; γ; Sp;
	^{249}Cm		249,0760		64 min	β^- 0,9;
	^{250}Cm		250,0784	0+	$1{,}7 \cdot 10^4$ a	Sp;
97	^{243}Bk		243,06302	(3/2–)	4,6 h	K; γ 0,755; 0,84; 0,946; (α);
	^{244}Bk		244,0652*)		4,4 h	K; γ 0,218; 0,892; 0,922; ...; (α);
	^{245}Bk		245,06639	(3/2–)	4,98 d	K; γ 0,253; 0,38; 0,39; e^-; (α);
	^{246}Bk		246,0688*)		1,8 d	K; γ 0,800; 1,07; ...;
	^{247}Bk		247,07029		$1{,}4 \cdot 10^3$ a	α 5,52; 5,68; 5,31; γ 0,084; 0,27;
	^{248}Bk		248,0729	(0–)	16 h	β^- 0,65; K;
	^{249}Bk		249,07500	7/2+	314 d (Sp $6 \cdot 10^8$ a)	β^- 0,125; (α); (γ);
	^{250}Bk		250,07832	(2–)	3,22 h	β^- 0,73; 1,76; ...; γ 0,990; 1,032; e^-;
98	^{244}Cf		244,06595	0+	25 min	α 7,18;
	^{245}Cf		245,06804		44 min	K; α 7,12;
	^{246}Cf		246,06883	0+	36 h (Sp $2{,}1 \cdot 10^3$ a)	α 6,76; 6,72; ...;
	^{247}Cf		247,0711*)		2,5 h	K; γ 0,295; 0,417; 0,460; e^-;
	^{248}Cf		248,07221	0+	350 d (Sp $\geq$ $1{,}5 \cdot 10^4$ a)	α 6,27; 6,22; γ;
	^{249}Cf		249,07487	9/2–	360 a (Sp $1{,}5 \cdot 10^9$ a)	α 5,81; 5,76; 5,95; ...; γ 0,333; 0,388;

	^{250}Cf	250,07643	0+	13 a (Sp $1,7 \cdot 10^4$ a)	α 6,03; 5,99; . . . ; e^-; γ;
	^{251}Cf	251,07960	1/2+	≶ 800 a	α 5,67; 5,85; γ 0,18;
	^{252}Cf	252,08164	0+	2,65 a (Sp 85 a)	α 6,12; 6,08; . . . ; γ; e^-; Sp;
	^{253}Cf	253,0851	(7/2+)	17,6 d	β^- 0,27; (α 5,98);
	^{254}Cf	254,0870	0+	60,5 d	Sp; (α 5,84);
99	^{245}Es	245,0711*)		1,3 min	K; α 7,70;
	^{246}Es	246,0730*)		7,3 min	K; α 7,33;
	^{247}Es	247,0730*)		5,0 min	K; α 7,33;
	^{248}Es	248,0751*)		25 min	K; (α 6,88);
	^{249}Es	249,07638		2 h	K; (α 6,77);
	^{250}Es	250,0786*)		8 h	K; γ;
	^{251}Es	251,0799		1,5 d	K; (α 6,49);
	^{252}Es	252,0828	(7+)	≶ 140 d	α 6,64; 6,58; 6,49; . . . ; γ 0,40; . . . ;
	^{253}Es	253,08484	7/2+	20,47 d (Sp $6,4 \cdot 10^5$ a)	α 6,64; 6,60; . . . ; (γ); e^-;
	^{254}Es	254,08803	(7+)	276 d (Sp $7 \cdot 10^5$ a)	α 6,44; 6,37; 6,42; . . . ; γ 0,063; . . . ; e^-;
	^{254m}Es	254,08814	(2–)	39,3 h (Sp > 10 a)	β^- 0,48; 1,13; . . . ; γ 0,69; 0,65; e^-; (K);
	^{255}Es	255,0902		38,3 d (Sp > 170 a)	β^-; α 6,31;
100	^{248}Fm	248,0773	0+	0,6 min	α;
	^{249}Fm	249,0792		≶ 2,5 min	α 7,9;
	^{250}Fm	250,07955	0+	30 min	α 7,44; K?
	^{251}Fm	251,0812*)		7 h	K; γ; α 6,89;

Ordnungs-zahl Z	Symbol	Häufigkeit	Nuklidmasse	Kernspin und Parität	Halbwert-zeit $t_{1/2}$	Zerfallsart und Energie der Strahlung
	^{252}Fm		252,08249	0+	23 h (Sp > 8 a)	α 7,05;
	^{253}Fm		253,0859		3 d	K; α 6,96; 6,91;
	^{254}Fm		254,08688	0+	3,24 h (Sp 246 d)	α 7,20; 7,16; γ; e⁻; (Sp);
	^{255}Fm		255,08999	7/2+	20,1 h (Sp 1 · 10⁴ a)	α 7,03; ...; γ 0,081; ...; e⁻;
	^{256}Fm		256,09173	0+	2,7 h	Sp (97%); α 6,86;
	^{257}Fm		257,0951	(9/2+)	80 d (Sp 100 a)	α 6,53; γ 0,242; 0,180; e⁻;
101	^{255}Md		255,0906		0,6 h	K; α 7,34;
	^{256}Md		256,0933		1,5 h	K; α 7,18;
	^{257}Md		257,0955		3 h	K; α 7,25?; 7,08; keine Sp.;
102	^{252}No		252,0891		2,1 s	α 8,41; Sp (30%);
	^{253}No		253,0902		95 s	α 8,02;
	^{254}No		254,0910	0+	55 s	α 8,10; keine Sp;
	^{255}No		255,0934		180 s	α 8,11;
	^{256}No		256,0943	0+	2,7 s	α 8,43; (Sp);
	^{257}No		257,0966		20 s	α 8,27; 8,23?;
103	$^{258, 259}$Lr				8 s	α 8,6;
104	^{260}Ku				0,3 s	Sp;

Anhang IV. Dosimetrie und Strahlenschutz

IV.1. Strahlendosis und Dosisleistung

Grundkenntnisse über die Einwirkung von Radionukliden und Strahlen auf den menschlichen Körper sind für den praktischen Strahlenschutz wichtig. Die Erfahrungen über diese Wirkungen, die in der Radiologie gewonnen werden, bilden die Grundlage für die gesetzlichen Bestimmungen der Strahlenschutzverordnung.

Die verschiedenen Einheiten der Strahlendosis haben wir in Abschn. 10.3. kennengelernt. In der Radiologie ist die Einheit 1 Röntgen (1 r) gebräuchlich; diese Ionendosis entspricht einer Energieabsorption von 87,7 erg in 1 g Luft. Für eine andere Substanz ist die Einheit 1 Röntgen nicht definiert. Die Energieabsorption hängt von der Ionisierbarkeit ab, diese von der Ordnungszahl. In Wasser ist die Energieabsorption ähnlich wie in Luft (97 erg pro g Wasser) und ebenso im Körpergewebe, das vorwiegend aus Wasser besteht. Um die Einheit 1 Röntgen auch auf das Gewebe anwenden zu können, bezeichnet man die Strahlendosis, die einer Energieabsorption von 97 erg pro g entspricht, als physikalisches Röntgenäquivalent, Einheit 1 rep (= „roentgen equivalent physical“).

Im Gegensatz zu der Ionendosis (Einheit 1 r) ist die in der Strahlenchemie übliche Energiedosis (Einheit 1 rad) von der Art der absorbierenden Substanz unabhängig; die Einheit 1 rad entspricht stets einer Energieabsorption von 100 erg/g Substanz. Mit einer für den praktischen Strahlenschutz hinreichenden Näherung gilt

$$1\,\mathrm{r} \approx 1\,\mathrm{rep} \approx 1\,\mathrm{rad} = 100\,\mathrm{erg\,pro\,g}. \qquad \text{(IV.1)}$$

Die Dosisleistung DL ist gegeben durch die Dosis D pro Zeiteinheit, $DL = \frac{\mathrm{d}D}{\mathrm{d}t}$ (vgl. Abschn. 10.3.). Die Einheit der Ionendosislei-

stung ist 1 r/s oder 1 r/h, die Einheit der Energiedosisleistung 1 rad/s oder 1 rad/h.

Die verschiedenen Strahlungsarten unterscheiden sich durch ihre biologische Wirksamkeit. Um dieser verschiedenen Wirksamkeit Rechnung zu tragen, multipliziert man die Dosis D oder die Dosisleistung DL mit dem Faktor für die relative biologische Wirksamkeit (RBW) und erhält so ein neues Maß für die Dosis, das man als Röntgenäquivalent für den Menschen bezeichnet und durch die Abkürzung rem charakterisiert (= „roentgen equivalent man"):

$$\text{Dosis in rem} = \text{Dosis in rep} \times \text{RBW}. \qquad \text{(IV.2)}$$

In Tab. IV.1. sind die Werte für die relative biologische Wirksamkeit verschiedener Strahlen angegeben. Protonen, α-Teilchen und

Tabelle IV.1.
Relative biologische Wirksamkeit (RBW) verschiedener Strahlen

Art der Strahlen	RBW
Röntgen-, γ- und β-Strahlen	1
thermische Neutronen	2,5
schnelle Neutronen	10
Protonen	10
α-Teilchen	10
Rückstoßkerne	20

Rückstoßatome bewirken eine höhere spezifische Ionisation und verursachen deshalb größeren Schaden. Die Neutronen erzeugen durch elastische und unelastische Streuung Ionen, Rückstoßkerne und γ-Strahlen.

IV.2. Äußere Einwirkung

Empfindlich gegenüber der Einwirkung ionisierender Strahlung sind die blutbildenden Organe, die Keimdrüsen (Gonaden) und die Augen; diese Organe werden deshalb als kritische Organe bezeichnet. Weniger empfindlich sind die Arme und Hände, die Beine und Füße, der Kopf (mit Ausnahme der Augen) und der Nacken.

Die Dosisleistung, die ein Körper von einer punktförmigen Strahlenquelle der Aktivität A im Abstand R erhält, berechnet sich nach folgender Gleichung (vgl. Abschn. 10.3.):

$$DL = k \frac{A}{R^2} \qquad \text{(IV.3)}$$

Die Dosisleistungskonstante k ist abhängig von der Art und der Energie der Strahlung sowie von dem Zerfallschema des Radionuklids, für β-Strahlen außerdem vom Abstand R. Werte für γ-Strahlen und Mittelwerte für β-Strahlen sind in Tabelle IV.2. zusammengestellt.

Tabelle IV.2.
Dosisleistungskonstanten für β-Strahlen (Mittelwerte) und γ-Strahlen

β-Strahlen		γ-Strahlen	
Energie in MeV	k_β in $\frac{\text{r}}{\text{h}} \cdot \frac{\text{m}^2}{\text{Ci}}$	Nuklid	k_γ in $\frac{\text{r}}{\text{h}} \cdot \frac{\text{m}^2}{\text{Ci}}$
		^{24}Na	1,91
0,3	61,6	^{42}K	0,195
0,5	47,7	^{59}Fe	0,655
0,7	42,0	^{60}Co	1,35
1,0	35,5	^{64}Cu	0,12
2,0	31,8	^{82}Br	1,51
10,0	37,2	^{124}Sb	0,79
		^{131}J	0,265
		^{137}Cs	0,34
		^{198}Au	0,24

Werte aus:
D. Frost: Praktischer Strahlenschutz. Walter De Gruyter & Co., Berlin 1960, S. 12.

Man entnimmt daraus, daß die Dosisleistungskonstante für γ-Strahlen um etwa zwei Größenordnungen niedriger ist als für β-Strahlen. Bei Näherungsrechnungen kann man für β-Strahlen mit dem Wert $k \approx 50 \frac{\text{r m}^2}{\text{h Ci}}$ rechnen, für γ-Strahlen mit dem Wert $k \approx 1 \frac{\text{r m}^2}{\text{h Ci}}$.
Wichtig für den praktischen Strahlenschutz ist der Einfluß des Abstandes R nach Gl. (IV.3). Er legt die Verwendung von Ferngreifzangen beim Umgang mit höheren Aktivitäten nahe.

Die Dosisleistung verschiedener nicht abgeschirmter Strahlenquellen ist in Tab. IV.3. angegeben. Diese Werte dienen lediglich zum Vergleich hinsichtlich der Größenordnung.

Tabelle IV.3.
Größenordnung der Dosisleistung verschiedener Strahlenquellen in 1 m Entfernung

Strahlenquelle	Dosisleistung in rad s^{-1}
Röntgenröhre	0,1
Hochleistungsröntgenröhre	10^2
Elektronen-Beschleuniger (1 mA)	10^5
1000 Ci ^{60}Co (γ)	0,1
Kernreaktor	10^2

IV.3. Innere Einwirkung

Grundsätzlich ist hervorzuheben, daß die innere Einwirkung von Radionukliden bedeutend gefährlicher ist als die äußere. Inkorporierte — d. h. vom Körper aufgenommene — Radionuklide können sich an bestimmten Stellen anreichern und dort bis zu ihrem vollständigen Zerfall wirksam sein. Für die Beurteilung der Radiotoxizität ist es deshalb wichtig, ob ein Radionuklid in den Knochen oder in einem Organ angereichert bzw. gespeichert wird und wie groß seine Halbwertzeit ist. Nach diesen Gesichtspunkten ist die Einteilung in Tab. IV.4. getroffen. Nach den Erfahrungen der Radiologen verursacht bereits 1 μg inkorporiertes Ra–226 erkennbare Effekte.

Tabelle IV.4.
Toxizität von Radionukliden

Radiotoxizität	Radionuklid
Sehr hoch	^{90}Sr, ^{210}Pb, ^{210}Po, ^{211}At, ^{226}Ra, ^{227}Ac, ^{233}U, ^{239}Pu, ^{241}Am, ^{242}Cm
Hoch	^{45}Ca, ^{59}Fe, ^{89}Sr, ^{91}Y, ^{106}Ru, ^{131}J, ^{140}Ba, ^{144}Ce, ^{151}Sm, ^{154}Eu, ^{170}Tm, ^{234}Th, ^{238}U
Mittel (Auswahl)	^{22}Na, ^{24}Na, ^{32}P, ^{35}S, ^{36}Cl, ^{42}K, ^{60}Co, ^{64}Cu, ^{82}Br, ^{98}Tc, ^{111}Ag, ^{132}J, ^{137}Cs, ^{147}Pm, ^{196}Au, ^{204}Tl
Schwach	^{3}H, ^{7}Be, ^{14}C, ^{18}F, ^{51}Cr, ^{71}Ge, ^{201}Tl

IV.4. Natürliche, zivilisatorische und berufliche Strahlenbelastung

Wir alle stehen unter dem Einfluß natürlicher Strahlung, die einerseits als kosmische Strahlung, andererseits als Erdstrahlung ständig auf uns einwirkt (vgl. Abschn. 1.1.). Die kosmische Strahlung enthält vor allen Dingen hochenergetische Protonen und andere Komponenten, die in der Atmosphäre durch Kernreaktionen weitere energiereiche Elementarteilchen und verschiedene Radionuklide, z. B. C–14, Tritium und Be–7, erzeugen (vgl. Abschn. 15.7.). Die Erdstrahlung hat im Gegensatz zur kosmischen Strahlung ihren Ursprung in der Erde, und zwar in den langlebigen natürlichen Radioelementen bzw. Radionukliden. Im Boden sind es die Radioelemente Uran und Thorium und ihre Folgeprodukte sowie die langlebigen Radionuklide K–40, Rb–87 u. a. (vgl. Tab. 1.2.), welche auch die Radioaktivität von Baustoffen bewirken, in der Luft die Emanation (d. h. die Isotope des Radioelements Radon, die in den Atemwegen einen Teil ihrer radioaktiven Folgeprodukte ablagern), im Trinkwasser z. B. das Radium, das im Knochensystem angereichert wird. Aus diesen verschiedenen Komponenten setzt sich die natürliche Strahlenbelastung zusammen. Mittelwerte sind in Tab. IV.5. angegeben. An vielen Stellen der Erde ist

Tabelle IV.5.
Natürliche Strahlenbelastung des Menschen (Mittelwerte)

	Dosis in mrem/a		
	Ganzkörper = Gonaden	Knochen	Lunge
Äußere Strahlung:			
Kosmische Strahlung	35	35	35
Erdstrahlung	70	70	70
Innere Strahlung:			
^{40}K	19	5	19
^{14}C	1,5	1,5	1,5
^{226}Ra	5	50	5
^{220}Rn und ^{222}Rn	—	—	120
Gesamtdosis:	≈ 130	≈ 160	≈ 250

Werte aus:
D. Frost: Praktischer Strahlenschutz. Walter De Gruyter & Co., Berlin 1960, S. 28.

die Strahlenbelastung erheblich höher, z. B. in der Nähe von Lagerstätten, die Monazitsand oder Uranerze enthalten, oder von stark radioaktiven Quellen.

Die zivilisatorische Strahlenbelastung ist individuell stark verschieden. Sie setzt sich zusammen aus der Einwirkung von Röntgenstrahlen (Röntgenaufnahmen und Röntgenbestrahlungen) und radioaktiven Nukliden (diagnostische und therapeutische Anwendungen, Leuchtziffern, radioaktive Niederschläge). Mittelwerte sind in Tab. IV.6. zusammengestellt. Der Anteil der radioaktiven Niederschläge („fall-out“) ist im Mittel verhältnismäßig gering, kann aber örtlich recht hohe Werte erreichen; außerdem ist eine biologische Anreicherung der Radionuklide möglich, z. B. im Wasser auf dem Weg über Plankton und Fische oder auf dem Land über Pflanzen und Tiere (z. B.

Tabelle IV.6.
Zivilisatorische Strahlenbelastung des Menschen (Mittelwerte)

	lokale Dosis	Ganzkörperdosis bzw. Gonadendosis
Röntgenbestrahlungen:		
Röntgenaufnahme	$\approx$ 1 r	$\approx$ 0,01 r
Mikroaufnahme	$\approx$ 0,1 r	$\approx$ 0,001 r
Röntgendurchleuchtung	10 r/min	$\approx$ 0,1 r/min
Therapeutische Röntgen- und γ-Bestrahlung	bis 6000 r	meist < 5 r
Behandlung mit radioaktiven Nukliden:		
Diagnostische Anwendung (Schilddrüse, Leber, Blut $-{}^{131}$J)		< 50 mrad (unter opt. techn. Bedingungen)
Therapeutische Anwendung	meist sehr hoch ($\approx 10^3$ r)	
Sonstige Strahlenquellen:		
Schuhdurchleuchtung	meist recht hoch	
Leuchtzifferblätter von Uhren		$\approx$ 10 – 40 mrad/a
Radioaktive Niederschläge (fall-out)		$\approx$ 30 mrad/a
Insgesamt (ohne Röntgenbestrahlungen und andere medizinische Anwendungen)		$\approx$ 1/4 der natürlichen Strahlenbelastung (vgl. Tab. IV.5.)

in der Milch). Im Mittel beträgt die zivilisatorische Strahlenbelastung — ohne Röntgenbestrahlungen und medizinische Anwendungen von Radionukliden — etwa ein Viertel der natürlichen Strahlenbelastung, wie ein Vergleich der Tabn. IV.5. und IV.6. zeigt.

Von der beruflichen Strahlenbelastung sind alle Personen betroffen, die beruflich mit Röntgenstrahlung und anderen Strahlen oder mit Radionukliden in Berührung kommen. Dabei kann es sich um Röntgeninstitute, technische Strahlenquellen zur Materialprüfung oder medizinischen Behandlung, Reaktoren und Beschleuniger oder kerntechnische Anlagen handeln. Als maximal zulässige Strahlenbelastung ohne Berücksichtigung genetischer Schäden gilt eine Einzeldosis von 25 r. Bei dieser Dosis treten keine klinisch erkennbaren Schäden ein. Eine Einzeldosis von 100 r gilt als kritische Dosis; sie führt zu Strahlenerkrankungen. 700 r ist die letale Dosis für Menschen. Unter Berücksichtigung evtl. möglicher genetischer Schäden sind folgende zulässige Dosiswerte festgelegt:

zulässige Einzeldosis 2 rem,
zulässige Jahresdosis 5 rem, daraus
zulässige Wochendosis 0,1 rem.

Die zulässige Dosis bis zum dreißigsten Lebensjahr beträgt insgesamt 60 rem, die zulässige Dosis für jedes weitere Jahrzehnt 50 rem. Bei Teilkörperbestrahlung (Hände, Unterarm, Füße) ist eine Dosis zugelassen, die um den Faktor 15 höher liegt (zulässige Jahresdosis 75 rem, zulässige Wochendosis 1,5 rem).

Beim Umgang mit Radionukliden ergeben sich beispielsweise folgende Werte: die ununterbrochene direkte Handhabung von 1 mCi eines harten γ-Strahlers (1 MeV) verursacht während eines Arbeitstages (8 h; 60 cm Abstand) eine Dosis von $\approx$ 10 mr. Wird die γ-Strahlung des Radionuklids durch 5 cm Blei abgeschirmt, so beträgt die Dosis unter den gleichen Bedingungen nur $\approx$ 0,1 mr; d. h. sie ist praktisch unmeßbar klein. β-Strahlen werden im Präparat selbst oder in dem Gefäß bereits weitgehend absorbiert, so daß die Dosis in den meisten praktischen Fällen sehr gering ist. Gegebenenfalls kann man sich durch einen Schirm aus Plexiglas von etwa 1 cm Stärke gegen die Einwirkung von β-Strahlen schützen.

IV.5. Gesetzliche Bestimmungen

Der Umgang mit Radionukliden sowie die Einfuhr und der Transport sind durch gesetzliche Bestimmungen geregelt. In der Bundesrepublik Deutschland sind die allgemeinen Bestimmungen hinsichtlich der Kernbrennstoffe in dem Gesetz über die friedliche Verwendung der Kernenergie und den Schutz gegen ihre Gefahren (Atomgesetz) vom 23.12.1959 enthalten, die Einzelbestimmungen hinsichtlich der übrigen Radionuklide in der Strahlenschutzverordnung (1. SSVO vom 24.6.1960). Dort sind auch die Freigrenzen festgelegt, die angeben, in welchen Mengen Radionuklide ohne behördliche Genehmigung verwendet werden können (vgl. Tab. IV.7.). Die maximal zulässigen Strahlendosen (vgl. Abschn. IV.4.) sind in den §§ 25 bis 29 zusammengestellt.

Tabelle IV.7.
Freigrenzen für Radionuklide

Element	Radionuklid	Freigrenze [μCi]
Actinium	Ac–227	0,1
	Ac–228	1
Americium	Am–241	0,1
	Am–243	0,1
Antimon	Sb–122	10
	Sb–124	10
	Sb–125	10
Argon	Ar–37	100
	Ar–41	10
Arsen	As–73	10
	As–74	10
	As–76	10
	As–77	10
Astat	At–211	0,1
Barium	Ba–131	10
	Ba–140	1
Berkelium	Bk–249	1
Beryllium	Be–7	100

Fortsetzung Tabelle IV.7.

Element	Radionuklid	Freigrenze [μCi]
Blei	Pb–203	10
	Pb–210	1
	Pb–212	1
Brom	Br–82	10
Cadmium	Cd–109	10
	Cd–115m	10
	Cd–115	10
Calcium	Ca–45	1
	Ca–47	1
Californium	Cf–249	0,1
	Cf–250	0,1
	Cf–252	0,1
Cäsium	Cs–131	100
	Cs–134m	100
	Cs–134	10
	Cs–135	10
	Cs–136	10
	Cs–137	10
Cer	Ce–141	10
	Ce–143	10
	Ce–144	1
Chlor	Cl–36	10
	Cl–38	100
Chrom	Cr–51	100
Curium	Cm–242	0,1
	Cm–243	0,1
	Cm–244	0,1
	Cm–245	0,1
	Cm–246	0,1
Dysprosium	Dy–165	100
	Dy–166	10
Eisen	Fe–55	10
	Fe–59	1
Erbium	Er–169	10
	Er–171	100
Europium	Eu–152 m_1	10
	Eu–152	1

Fortsetzung Tabelle IV.7.

Element	Radionuklid	Freigrenze [μCi]
Europium	Eu–154	1
	Eu–155	1
Fluor	F–18	100
Gadolinium	Gd–153	10
	Gd–159	100
Gallium	Ga–72	10
Germanium	Ge–71	100
Gold	Au–196	10
	Au–198	10
	Au–199	10
Hafnium	Hf–181	10
Holmium	Ho–166	10
Indium	In–113m	100
	In–114m	10
	In–115m	100
	In–115	nicht beschränkt
Iridium	Ir–190	10
	Ir–192	10
	Ir–194	10
Jod	J–126	1
	J–129	1
	J–131	1
	J–132	10
	J–133	10
	J–134	10
	J–135	10
Kalium	K–42	10
	K-natürlich	nicht beschränkt
Kobalt	Co–57	10
	Co–58m	10
	Co–58	10
	Co–60	10
Kohlenstoff	C–14	100
Krypton	Kr–85m	10
	Kr–85	100
	Kr–87	10

Fortsetzung Tabelle IV.7.

Element	Radionuklid	Freigrenze [μCi]
Kupfer	Cu–64	10
Lanthan	La–140	10
Lutetium	Lu–177	10
Mangan	Mn–52	10
	Mn–54	10
	Mn–56	10
Molybdän	Mo–99	10
Natrium	Na–22	10
	Na–24	10
Neodym	Nd–144	nicht beschränkt
	Nd–147	10
	Nd–149	100
Neptunium	Np–237	0,1
	Np–239	10
Nickel	Ni–59	10
	Ni–63	10
	Ni–65	10
Niob	Nb–93m	10
	Nb–95	10
	Nb–97	100
Osmium	Os–185	10
	Os–191m	100
	Os–191	10
	Os–193	10
Palladium	Pd–103	10
	Pd–109	10
Phosphor	P–32	10
Platin	Pt–191	10
	Pt–193m	10
	Pt–193	10
	Pt–197m	100
	Pt–197	10
Plutonium	Pu–238	0,1
	Pu–239	0,1
	Pu–240	0,1
	Pu–241	1

Fortsetzung Tabelle IV.7.

Element	Radionuklid	Freigrenze [μCi]
Plutonium	Pu–242	0,1
Polonium	Po–210	0,1
Praseodym	Pr–142	10
	Pr–143	10
Promethium	Pm–147	10
	Pm–149	10
Protactinium	Pa–230	1
	Pa–231	0,1
	Pa–233	10
Quecksilber	Hg–197m	10
	Hg–197	10
	Hg–203	1
Radium	Ra–223	1
	Ra–224	1
	Ra–226	0,1
	Ra–228	0,1
Radon	Rn–220	10
	Rn–222	0,1
Rhenium	Re–183	10
	Re–186	10
	Re–187	10
	Re–188	10
Rhodium	Rh–103m	100
	Rh–105	10
Rubidium	Rb–86	10
	Rb–87	10
Ruthenium	Ru–97	10
	Ru–103	10
	Ru–105	10
	Ru–106	1
Samarium	Sm–147	1
	Sm–151	1
	Sm–153	10
Schwefel	S–35	10
Selen	Se–75	10
Silber	Ag–105	10

Fortsetzung Tabelle IV.7.

Element	Radionuklid	Freigrenze [μCi]
Silber	Ag–110m	10
	Ag–111	10
Silicium	Si–31	100
Scandium	Sc–46	10
	Sc–47	10
	Sc–48	10
Strontium	Sr–85m	0,1
	Sr–85	0,1
	Sr–89	1
	Sr–90	0,1
	Sr–91	10
	Sr–92	10
Tantal	Ta–182	10
Technetium	Tc–96m	100
	Tc–96	10
	Tc–97m	10
	Tc–97	10
	Tc–99m	100
	Tc–99	10
Tellur	Te–125m	10
	Te–127m	10
	Te–127	10
	Te–129m	10
	Te–129	10
	Te–131m	10
	Te–132	0,1
Terbium	Tb–160	10
Thallium	Tl–200	10
	Tl–201	100
	Tl–202	10
	Tl–204	10
Thorium	Th–227	1
	Th–228	0,1
	Th–230	0,1
	Th–231	10
	Th–232	0,1
	Th–234	1
	Th-natürlich	0,1
Thulium	Tm–170	1

Fortsetzung Tabelle IV.7.

Element	Radionuklid	Freigrenze [μCi]
Thulium	Tm–171	10
Tritium	H–3	siehe Wasserstoff
Uran	U–230	1
	U–232	0,1
	U–233	1
	U–234	0,1
	U–235	1
	U–236	1
	U–238	1
	U-natürlich	1
Vanadium	V–48	10
Wasserstoff	H–3	100
Wismut	Bi–206	1
	Bi–207	1
	Bi–210	1
	Bi–212	1
Wolfram	W–181	10
	W–185	10
	W–187	0,1
Xenon	Xe–131m	0,1
	Xe–133	10
	Xe–135	10
Ytterbium	Yb–175	10
Yttrium	Y–90	10
	Y–91m	0,1
	Y–91	1
	Y–92	10
	Y–93	10
Zink	Zn–65	10
	Zn–69m	10
	Zn–69	10
Zinn	Sn–113	10
	Sn–125	10
Zirkonium	Zr–93	10
	Zr–95	10
	Zr–97	100
Alle anderen nicht aufgeführten radioaktiven Stoffe		0,1

Für die Tätigkeit in kernchemischen Laboratorien sind gewisse Grundkenntnisse erforderlich über Kernreaktionen und die Gesetze des radioaktiven Zerfalls, die Messung radioaktiver Strahlung, die chemische Handhabung von Radionukliden sowie die gebräuchlichen Aktivitäts- und Dosiseinheiten. Die Strahlenschutzverordnung unterscheidet Kontrollbereiche und Überwachungsbereiche, außerdem geschlossene und offene radioaktive Präparate. Allgemeine Vorschriften über den Umgang mit offenen Präparaten sind in den §§ 34 und 39 bis 42 der 1. SSVO gegeben. Danach muß sichergestellt werden, daß keine radioaktiven Stoffe in die Luft, das Abwasser oder den Boden gelangen. Im Laboratorium ist jedes Verhalten, das eine Inkorporierung von radioaktiven Stoffen ermöglicht (Essen, Trinken, Rauchen) untersagt. Es ist zweckmäßig, alle Geräte oder Gefäße, die mit radioaktiven Stoffen in Berührung kommen, zu kennzeichnen und sofort nach Beendigung der Arbeit zu dekontaminieren, die radioaktiven Abfälle nach den Angaben der für den Strahlenschutz verantwortlichen Personen zu sammeln und gegebenenfalls aufzuarbeiten. Die Strahlenschutzüberwachung der in den Laboratorien tätigen Personen (§§ 35 bis 38 der 1. SSVO) erstreckt sich auf die Kontrolle der Strahlendosis mit Filmplaketten, die monatlich ausgewertet werden; es ist zweckmäßig, außerdem Taschendosimeter zu tragen, die laufend abgelesen werden können und so eine Selbstkontrolle der Mitarbeiter ermöglichen. Außerdem sind regelmäßige Laboratoriumskontrollen durch Messungen der Orts- und Personendosen vorgeschrieben. Bei der ärztlichen Überwachung (§§ 46 bis 52 der 1. SSVO) werden der allgemeine Gesundheitszustand sowie Blut und Urin kontrolliert. Wenn die Gefahr besteht, daß radioaktive Stoffe inkorporiert wurden, ist eine unverzügliche ärztliche Untersuchung vorgeschrieben.

Die maximal zulässigen Konzentrationen von Radionukliden in der Luft und im Trinkwasser sind im Anhang zur Strahlenschutzverordnung angegeben, vgl. Tab. IV.8.

Tabelle IV.8.
Maximal zulässige Konzentrationen von Radionukliden in der Luft und im Trinkwasser

Element	Radionuklid	max. zulässige Konzentration in Wasser [μCi/ml]	max. zulässige Konzentration in Luft [μCi/cm^3]
Actinium	Ac–227	$2 \cdot 10^{-5}$	$8 \cdot 10^{-13}$
	Ac–228	$9 \cdot 10^{-4}$	$6 \cdot 10^{-9}$
Americium	Am–241	$4 \cdot 10^{-5}$	$2 \cdot 10^{-12}$
	Am–243	$4 \cdot 10^{-5}$	$2 \cdot 10^{-12}$
Antimon	Sb–122	$3 \cdot 10^{-4}$	$5 \cdot 10^{-8}$
	Sb–124	$2 \cdot 10^{-4}$	$7 \cdot 10^{-9}$
	Sb–125	$1 \cdot 10^{-3}$	$9 \cdot 10^{-9}$
Argon	Ar–37	$5 \cdot 10^{-2}$	$1 \cdot 10^{-3}$
	Ar–41	$3 \cdot 10^{-3}$	$4 \cdot 10^{-7}$
Arsen	As–73	$5 \cdot 10^{-3}$	$1 \cdot 10^{-7}$
	As–74	$5 \cdot 10^{-4}$	$4 \cdot 10^{-8}$
	As–76	$2 \cdot 10^{-4}$	$3 \cdot 10^{-8}$
	As–77	$8 \cdot 10^{-4}$	$1 \cdot 10^{-7}$
Astat	At–211	$1 \cdot 10^{-5}$	$1 \cdot 10^{-9}$
Barium	Ba–131	$2 \cdot 10^{-3}$	$1 \cdot 10^{-7}$
	Ba–140	$2 \cdot 10^{-4}$	$1 \cdot 10^{-8}$
Berkelium	Bk–249	$6 \cdot 10^{-3}$	$3 \cdot 10^{-10}$
Beryllium	Be–7	$2 \cdot 10^{-2}$	$4 \cdot 10^{-7}$
Blei	Pb–203	$4 \cdot 10^{-3}$	$6 \cdot 10^{-7}$
	Pb–210	$1 \cdot 10^{-6}$	$4 \cdot 10^{-11}$
	Pb–212	$2 \cdot 10^{-4}$	$6 \cdot 10^{-9}$
Brom	Br–82	$4 \cdot 10^{-4}$	$6 \cdot 10^{-8}$
Cadmium	Cd–109	$2 \cdot 10^{-3}$	$2 \cdot 10^{-8}$
	Cd–115m	$3 \cdot 10^{-4}$	$1 \cdot 10^{-8}$
	Cd–115	$3 \cdot 10^{-4}$	$6 \cdot 10^{-8}$
Calcium	Ca–45	$9 \cdot 10^{-5}$	$1 \cdot 10^{-8}$
	Ca–47	$3 \cdot 10^{-4}$	$6 \cdot 10^{-8}$
Californium	Cf–249	$4 \cdot 10^{-5}$	$5 \cdot 10^{-13}$
	Cf–250	$1 \cdot 10^{-4}$	$2 \cdot 10^{-12}$
	Cf–252	$7 \cdot 10^{-5}$	$2 \cdot 10^{-12}$
Cäsium	Cs–131	$9 \cdot 10^{-3}$	$1 \cdot 10^{-6}$
	Cs–134m	$1 \cdot 10^{-2}$	$2 \cdot 10^{-6}$
	Cs–134	$9 \cdot 10^{-5}$	$4 \cdot 10^{-9}$

Fortsetzung Tabelle IV.8.

Element	Radionuklid	max. zulässige Konzentration in Wasser [μCi/ml]	in Luft [μCi/cm^3]
Cäsium	Cs–135	$1 \cdot 10^{-3}$	$3 \cdot 10^{-8}$
	Cs–136	$6 \cdot 10^{-4}$	$6 \cdot 10^{-8}$
	Cs–137	$2 \cdot 10^{-4}$	$5 \cdot 10^{-9}$
Cer	Ce–141	$9 \cdot 10^{-4}$	$5 \cdot 10^{-8}$
	Ce–143	$4 \cdot 10^{-4}$	$7 \cdot 10^{-8}$
	Ce–144	$1 \cdot 10^{-4}$	$2 \cdot 10^{-9}$
Chlor	Cl–36	$6 \cdot 10^{-4}$	$8 \cdot 10^{-9}$
	Cl–38	$4 \cdot 10^{-3}$	$7 \cdot 10^{-7}$
Chrom	Cr–51	$2 \cdot 10^{-2}$	$8 \cdot 10^{-7}$
Curium	Cm–242	$2 \cdot 10^{-4}$	$4 \cdot 10^{-11}$
	Cm–243	$5 \cdot 10^{-5}$	$2 \cdot 10^{-12}$
	Cm–244	$7 \cdot 10^{-5}$	$3 \cdot 10^{-12}$
	Cm–245	$4 \cdot 10^{-5}$	$2 \cdot 10^{-12}$
	Cm–246	$4 \cdot 10^{-5}$	$2 \cdot 10^{-12}$
Dysprosium	Dy–165	$4 \cdot 10^{-3}$	$7 \cdot 10^{-7}$
	Dy–166	$4 \cdot 10^{-4}$	$7 \cdot 10^{-8}$
Eisen	Fe–55	$8 \cdot 10^{-3}$	$3 \cdot 10^{-7}$
	Fe–59	$5 \cdot 10^{-4}$	$2 \cdot 10^{-8}$
Erbium	Er–169	$9 \cdot 10^{-4}$	$1 \cdot 10^{-7}$
	Er–171	$1 \cdot 10^{-3}$	$2 \cdot 10^{-7}$
Europium	Eu–152m_1	$6 \cdot 10^{-4}$	$1 \cdot 10^{-7}$
	Eu–152	$8 \cdot 10^{-4}$	$4 \cdot 10^{-9}$
	Eu–154	$2 \cdot 10^{-4}$	$1 \cdot 10^{-9}$
	Eu–155	$2 \cdot 10^{-3}$	$3 \cdot 10^{-8}$
Fluor	F–18	$5 \cdot 10^{-3}$	$9 \cdot 10^{-7}$
Gadolinium	Gd–153	$2 \cdot 10^{-3}$	$3 \cdot 10^{-8}$
	Gd–159	$8 \cdot 10^{-4}$	$1 \cdot 10^{-7}$
Gallium	Ga–72	$4 \cdot 10^{-4}$	$6 \cdot 10^{-8}$
Germanium	Ge–71	$2 \cdot 10^{-2}$	$2 \cdot 10^{-6}$
Gold	Au–196	$1 \cdot 10^{-3}$	$2 \cdot 10^{-7}$
	Au–198	$5 \cdot 10^{-4}$	$8 \cdot 10^{-8}$
	Au–199	$2 \cdot 10^{-3}$	$3 \cdot 10^{-7}$
Hafnium	Hf–181	$7 \cdot 10^{-4}$	$1 \cdot 10^{-8}$
Holmium	Ho–166	$3 \cdot 10^{-4}$	$6 \cdot 10^{-8}$

Fortsetzung Tabelle IV.8.

Element	Radionuklid	max. zulässige Konzentration in Wasser [μCi/ml]	in Luft [μCi/cm^3]
Indium	In–113m	$1 \cdot 10^{-2}$	$2 \cdot 10^{-6}$
	In–114m	$2 \cdot 10^{-4}$	$7 \cdot 10^{-9}$
	In–115m	$4 \cdot 10^{-3}$	$6 \cdot 10^{-7}$
	In–115	nicht beschränkt	$1 \cdot 10^{-8}$
Iridium	Ir–190	$2 \cdot 10^{-3}$	$1 \cdot 10^{-7}$
	Ir–192	$4 \cdot 10^{-4}$	$9 \cdot 10^{-9}$
	Ir–194	$3 \cdot 10^{-4}$	$5 \cdot 10^{-8}$
Jod	J–126	$1 \cdot 10^{-5}$	$2 \cdot 10^{-9}$
	J–129	$2 \cdot 10^{-6}$	$3 \cdot 10^{-10}$
	J–131	$1 \cdot 10^{-5}$	$2 \cdot 10^{-9}$
	J–132	$3 \cdot 10^{-4}$	$4 \cdot 10^{-8}$
	J–133	$4 \cdot 10^{-5}$	$5 \cdot 10^{-9}$
	J–134	$5 \cdot 10^{-4}$	$1 \cdot 10^{-7}$
	J–135	$1 \cdot 10^{-4}$	$2 \cdot 10^{-8}$
Kalium	K–42	$2 \cdot 10^{-4}$	$4 \cdot 10^{-8}$
	K-natürlich	nicht beschränkt	nicht beschränkt
Kobalt	Co–57	$4 \cdot 10^{-3}$	$6 \cdot 10^{-8}$
	Co–58m	$2 \cdot 10^{-2}$	$3 \cdot 10^{-6}$
	Co–58	$9 \cdot 10^{-4}$	$2 \cdot 10^{-8}$
	Co–60	$3 \cdot 10^{-4}$	$3 \cdot 10^{-9}$
Kohlenstoff	C–14	$8 \cdot 10^{-3}$	$1 \cdot 10^{-6}$
Krypton	Kr–85m	$2 \cdot 10^{-3}$	$1 \cdot 10^{-6}$
	Kr–85	$6 \cdot 10^{-4}$	$3 \cdot 10^{-6}$
	Kr–87	$2 \cdot 10^{-3}$	$2 \cdot 10^{-7}$
Kupfer	Cu–64	$2 \cdot 10^{-3}$	$4 \cdot 10^{-7}$
Lanthan	La–140	$2 \cdot 10^{-4}$	$4 \cdot 10^{-8}$
Lutetium	Lu–177	$1 \cdot 10^{-3}$	$2 \cdot 10^{-7}$
Mangan	Mn–52	$3 \cdot 10^{-4}$	$5 \cdot 10^{-8}$
	Mn–54	$1 \cdot 10^{-3}$	$1 \cdot 10^{-8}$
	Mn–56	$1 \cdot 10^{-3}$	$2 \cdot 10^{-7}$
Molybdän	Mo–99	$4 \cdot 10^{-4}$	$7 \cdot 10^{-8}$
Natrium	Na–22	$3 \cdot 10^{-4}$	$3 \cdot 10^{-9}$
	Na–24	$3 \cdot 10^{-4}$	$5 \cdot 10^{-8}$

Fortsetzung Tabelle IV.8.

Element	Radionuklid	max. zulässige Konzentration in Wasser [μCi/ml]	in Luft [μCi/cm^3]
Neodym	Nd–144	nicht beschränkt	$3 \cdot 10^{-11}$
	Nd–147	$6 \cdot 10^{-4}$	$8 \cdot 10^{-8}$
	Nd–149	$3 \cdot 10^{-3}$	$5 \cdot 10^{-7}$
Neptunium	Np–237	$3 \cdot 10^{-5}$	$1 \cdot 10^{-12}$
	Np–239	$1 \cdot 10^{-3}$	$2 \cdot 10^{-7}$
Nickel	Ni–59	$2 \cdot 10^{-3}$	$2 \cdot 10^{-7}$
	Ni–63	$3 \cdot 10^{-4}$	$2 \cdot 10^{-8}$
	Ni–65	$1 \cdot 10^{-3}$	$2 \cdot 10^{-7}$
Niob	Nb–93m	$4 \cdot 10^{-3}$	$4 \cdot 10^{-8}$
	Nb–95	$1 \cdot 10^{-3}$	$3 \cdot 10^{-8}$
	Nb–97	$9 \cdot 10^{-3}$	$2 \cdot 10^{-6}$
Osmium	Os–185	$7 \cdot 10^{-4}$	$2 \cdot 10^{-8}$
	Os–191m	$2 \cdot 10^{-2}$	$3 \cdot 10^{-6}$
	Os–191	$2 \cdot 10^{-3}$	$1 \cdot 10^{-7}$
	Os–193	$5 \cdot 10^{-4}$	$9 \cdot 10^{-8}$
Palladium	Pd–103	$3 \cdot 10^{-3}$	$3 \cdot 10^{-7}$
	Pd–109	$7 \cdot 10^{-4}$	$1 \cdot 10^{-7}$
Phosphor	P–32	$2 \cdot 10^{-4}$	$2 \cdot 10^{-8}$
Platin	Pt–191	$1 \cdot 10^{-3}$	$2 \cdot 10^{-7}$
	Pt–193m	$1 \cdot 10^{-2}$	$2 \cdot 10^{-6}$
	Pt–193	$9 \cdot 10^{-3}$	$1 \cdot 10^{-7}$
	Pt–197m	$9 \cdot 10^{-3}$	$2 \cdot 10^{-6}$
	Pt–197	$1 \cdot 10^{-3}$	$2 \cdot 10^{-7}$
Plutonium	Pu–238	$5 \cdot 10^{-5}$	$7 \cdot 10^{-13}$
	Pu–239	$5 \cdot 10^{-5}$	$6 \cdot 10^{-13}$
	Pu–240	$5 \cdot 10^{-5}$	$6 \cdot 10^{-13}$
	Pu–241	$2 \cdot 10^{-3}$	$3 \cdot 10^{-11}$
	Pu–242	$5 \cdot 10^{-5}$	$6 \cdot 10^{-13}$
Polonium	Po–210	$7 \cdot 10^{-6}$	$7 \cdot 10^{-11}$
Praseodym	Pr–142	$3 \cdot 10^{-4}$	$5 \cdot 10^{-8}$
	Pr–143	$5 \cdot 10^{-4}$	$6 \cdot 10^{-8}$
Promethium	Pm–147	$2 \cdot 10^{-3}$	$2 \cdot 10^{-8}$
	Pm–149	$4 \cdot 10^{-4}$	$8 \cdot 10^{-8}$

Fortsetzung Tabelle IV.8.

Element	Radionuklid	max. zulässige Konzentration in Wasser [μCi/ml]	in Luft [μCi/cm^3]
Protactinium	Pa–230	$2 \cdot 10^{-3}$	$3 \cdot 10^{-10}$
	Pa–231	$9 \cdot 10^{-6}$	$4 \cdot 10^{-13}$
	Pa–233	$1 \cdot 10^{-3}$	$6 \cdot 10^{-8}$
Quecksilber	Hg–197m	$2 \cdot 10^{-3}$	$3 \cdot 10^{-7}$
	Hg–197	$3 \cdot 10^{-3}$	$4 \cdot 10^{-7}$
	Hg–203	$2 \cdot 10^{-4}$	$2 \cdot 10^{-8}$
Radium	Ra–223	$7 \cdot 10^{-6}$	$8 \cdot 10^{-11}$
	Ra–224	$2 \cdot 10^{-5}$	$2 \cdot 10^{-10}$
	Ra–226	$1 \cdot 10^{-7}$	$1 \cdot 10^{-11}$
	Ra–228	$3 \cdot 10^{-7}$	$1 \cdot 10^{-11}$
Radon	Rn–220	$5 \cdot 10^{-5}$	$1 \cdot 10^{-7}$
	Rn–222	$5 \cdot 10^{-5}$	$1 \cdot 10^{-8}$
Rhenium	Re–183	$3 \cdot 10^{-3}$	$5 \cdot 10^{-8}$
	Re–186	$5 \cdot 10^{-4}$	$8 \cdot 10^{-8}$
	Re–187	$2 \cdot 10^{-2}$	$2 \cdot 10^{-7}$
	Re–188	$3 \cdot 10^{-4}$	$6 \cdot 10^{-8}$
Rhodium	Rh–103m	$1 \cdot 10^{-1}$	$2 \cdot 10^{-5}$
	Rh–105	$1 \cdot 10^{-3}$	$2 \cdot 10^{-7}$
Rubidium	Rb–86	$2 \cdot 10^{-4}$	$2 \cdot 10^{-8}$
	Rb–87	$1 \cdot 10^{-3}$	$2 \cdot 10^{-8}$
Ruthenium	Ru–97	$3 \cdot 10^{-3}$	$6 \cdot 10^{-7}$
	Ru–103	$8 \cdot 10^{-4}$	$3 \cdot 10^{-8}$
	Ru–105	$1 \cdot 10^{-3}$	$2 \cdot 10^{-7}$
	Ru–106	$1 \cdot 10^{-4}$	$2 \cdot 10^{-9}$
Samarium	Sm–147	$6 \cdot 10^{-4}$	$2 \cdot 10^{-11}$
	Sm–151	$4 \cdot 10^{-3}$	$2 \cdot 10^{-8}$
	Sm–153	$8 \cdot 10^{-4}$	$1 \cdot 10^{-7}$
Schwefel	S–35	$6 \cdot 10^{-4}$	$9 \cdot 10^{-8}$
Selen	Se–75	$3 \cdot 10^{-3}$	$4 \cdot 10^{-8}$
Silber	Ag–105	$1 \cdot 10^{-3}$	$3 \cdot 10^{-8}$
	Ag–110m	$3 \cdot 10^{-4}$	$3 \cdot 10^{-9}$
	Ag–111	$4 \cdot 10^{-4}$	$8 \cdot 10^{-8}$
Silicium	Si–31	$2 \cdot 10^{-3}$	$3 \cdot 10^{-7}$
Scandium	Sc–46	$4 \cdot 10^{-4}$	$8 \cdot 10^{-9}$
	Sc–47	$9 \cdot 10^{-4}$	$2 \cdot 10^{-7}$
	Sc–48	$3 \cdot 10^{-4}$	$5 \cdot 10^{-8}$

Fortsetzung Tabelle IV.8.

Element	Radionuklid	max. zulässige Konzentration in Wasser [μCi/ml]	in Luft [μCi/cm^3]
Strontium	Sr–85m	$7 \cdot 10^{-2}$	$1 \cdot 10^{-5}$
	Sr–85	$1 \cdot 10^{-3}$	$4 \cdot 10^{-8}$
	Sr–89	$1 \cdot 10^{-4}$	$1 \cdot 10^{-8}$
	Sr–90	$1 \cdot 10^{-6}$	$1 \cdot 10^{-10}$
	Sr–91	$5 \cdot 10^{-4}$	$9 \cdot 10^{-8}$
	Sr–92	$6 \cdot 10^{-4}$	$1 \cdot 10^{-7}$
Tantal	Ta–182	$4 \cdot 10^{-4}$	$7 \cdot 10^{-9}$
Technetium	Tc–96m	$1 \cdot 10^{-1}$	$1 \cdot 10^{-5}$
	Tc–96	$5 \cdot 10^{-4}$	$8 \cdot 10^{-8}$
	Tc–97m	$2 \cdot 10^{-3}$	$5 \cdot 10^{-8}$
	Tc–97	$8 \cdot 10^{-3}$	$1 \cdot 10^{-7}$
	Tc–99m	$3 \cdot 10^{-2}$	$5 \cdot 10^{-6}$
	Tc–99	$2 \cdot 10^{-3}$	$2 \cdot 10^{-8}$
Tellur	Te–125m	$1 \cdot 10^{-3}$	$4 \cdot 10^{-8}$
	Te–127m	$5 \cdot 10^{-4}$	$1 \cdot 10^{-8}$
	Te–127	$2 \cdot 10^{-3}$	$3 \cdot 10^{-7}$
	Te–129m	$2 \cdot 10^{-4}$	$1 \cdot 10^{-8}$
	Te–129	$8 \cdot 10^{-3}$	$1 \cdot 10^{-6}$
	Te–131m	$4 \cdot 10^{-4}$	$6 \cdot 10^{-8}$
	Te–132	$2 \cdot 10^{-4}$	$4 \cdot 10^{-8}$
Terbium	Tb–160	$4 \cdot 10^{-4}$	$1 \cdot 10^{-8}$
Thallium	Tl–200	$2 \cdot 10^{-3}$	$4 \cdot 10^{-7}$
	Tl–201	$2 \cdot 10^{-3}$	$3 \cdot 10^{-7}$
	Tl–202	$7 \cdot 10^{-4}$	$8 \cdot 10^{-8}$
	Tl–204	$6 \cdot 10^{-4}$	$9 \cdot 10^{-9}$
Thorium	Th–227	$2 \cdot 10^{-4}$	$6 \cdot 10^{-11}$
	Th–228	$7 \cdot 10^{-5}$	$2 \cdot 10^{-12}$
	Th–230	$2 \cdot 10^{-5}$	$8 \cdot 10^{-13}$
	Th–231	$2 \cdot 10^{-3}$	$4 \cdot 10^{-7}$
	Th–232	$2 \cdot 10^{-5}$	$7 \cdot 10^{-13}$
	Th–234	$2 \cdot 10^{-4}$	$1 \cdot 10^{-8}$
	Th-natürlich	$1 \cdot 10^{-5}$	$6 \cdot 10^{-13}$
Thulium	Tm–170	$5 \cdot 10^{-4}$	$1 \cdot 10^{-8}$
	Tm–171	$5 \cdot 10^{-3}$	$4 \cdot 10^{-8}$
Tritium	H–3	siehe Wasserstoff	
Uran	U–230	$5 \cdot 10^{-5}$	$4 \cdot 10^{-11}$
	U–232	$3 \cdot 10^{-4}$	$9 \cdot 10^{-12}$
	U–233	$3 \cdot 10^{-4}$	$4 \cdot 10^{-11}$

Fortsetzung Tabelle IV.8.

Element	Radionuklid	max. zulässige Konzentration in Wasser [μCi/ml]	in Luft [μCi/cm^3]
Uran	U–234	$3 \cdot 10^{-4}$	$4 \cdot 10^{-11}$
	U–235	$3 \cdot 10^{-4}$	$4 \cdot 10^{-11}$
	U–236	$3 \cdot 10^{-4}$	$4 \cdot 10^{-11}$
	U–238	$4 \cdot 10^{-4}$	$3 \cdot 10^{-11}$
	U-natürlich	$2 \cdot 10^{-4}$	$2 \cdot 10^{-11}$
Vanadium	V–48	$3 \cdot 10^{-4}$	$2 \cdot 10^{-8}$
Wasserstoff	H–3	$3 \cdot 10^{-2}$	$2 \cdot 10^{-6}$
Wismut	Bi–206	$4 \cdot 10^{-4}$	$5 \cdot 10^{-8}$
	Bi–207	$6 \cdot 10^{-4}$	$5 \cdot 10^{-9}$
	Bi–210	$4 \cdot 10^{-4}$	$2 \cdot 10^{-9}$
	Bi–212	$4 \cdot 10^{-3}$	$3 \cdot 10^{-8}$
Wolfram	W–181	$3 \cdot 10^{-3}$	$4 \cdot 10^{-8}$
	W–185	$1 \cdot 10^{-3}$	$4 \cdot 10^{-8}$
	W–187	$6 \cdot 10^{-4}$	$1 \cdot 10^{-7}$
Xenon	Xe–131m	$1 \cdot 10^{-3}$	$4 \cdot 10^{-6}$
	Xe–133	$1 \cdot 10^{-3}$	$3 \cdot 10^{-6}$
	Xe–135	$1 \cdot 10^{-3}$	$1 \cdot 10^{-6}$
Ytterbium	Yb–175	$1 \cdot 10^{-3}$	$2 \cdot 10^{-7}$
Yttrium	Y–90	$2 \cdot 10^{-4}$	$3 \cdot 10^{-8}$
	Y–91m	$3 \cdot 10^{-2}$	$6 \cdot 10^{-6}$
	Y–91	$3 \cdot 10^{-4}$	$1 \cdot 10^{-8}$
	Y–92	$6 \cdot 10^{-4}$	$1 \cdot 10^{-7}$
	Y–93	$3 \cdot 10^{-4}$	$5 \cdot 10^{-8}$
Zink	Zn–65	$1 \cdot 10^{-3}$	$2 \cdot 10^{-8}$
	Zn–69m	$6 \cdot 10^{-4}$	$1 \cdot 10^{-7}$
	Zn–69	$2 \cdot 10^{-2}$	$2 \cdot 10^{-6}$
Zinn	Sn–113	$8 \cdot 10^{-4}$	$2 \cdot 10^{-8}$
	Sn–125	$2 \cdot 10^{-4}$	$3 \cdot 10^{-8}$
Zirkonium	Zr–93	$8 \cdot 10^{-3}$	$4 \cdot 10^{-8}$
	Zr–94	$6 \cdot 10^{-4}$	$1 \cdot 10^{-8}$
	Zr–97	$2 \cdot 10^{-4}$	$3 \cdot 10^{-8}$

Fortsetzung Tabelle IV.8.

Gemische	max. zulässige in Wasser [μCi/ml]	Konzentration in Luft [μCi/cm^3]
Radioaktive Stoffe oder Gemische solcher Stoffe in Wasser, die nicht analysiert oder in dieser Tabelle nicht genannt sind.	$1 \cdot 10^{-7}$	—
Gemische von in dieser Tabelle aufgeführten radioaktiven Stoffen in Wasser, die nicht analysiert, jedoch frei von Radium 226 und Radium 228 sind.	$1 \cdot 10^{-6}$	—
Gemische von in dieser Tabelle aufgeführten radioaktiven Stoffen in Wasser, die nicht analysiert, jedoch frei von Strontium 90, Blei 210, Radium 226 und Radium 228 sind.	$6 \cdot 10^{-6}$	—
Gemische von in dieser Tabelle aufgeführten radioaktiven Stoffen in Wasser, die nicht analysiert, jedoch frei von Strontium 90, Jod 129, Blei 210, Polonium 210, Radium 223, Radium 226, Radium 228, Protactinium 231 und natürlichem Thorium sind.	$2 \cdot 10^{-5}$	—
Gemische von in dieser Tabelle aufgeführten radioaktiven Stoffen in Wasser, die nicht analysiert, jedoch frei von Strontium 90, Jod 129, Blei 210, Polonium 210, Astat 211, Radium 223, Radium 224, Radium 226, Actinium 227, Radium 228, Thorium 230, Protactinium 231, Thorium 232 und natürlichem Thorium sind.	$3 \cdot 10^{-5}$	—
Radioaktive Stoffe oder Gemische solcher Stoffe in Luft, die nicht analysiert oder in dieser Tabelle nicht genannt sind.	—	$4 \cdot 10^{-13}$
Gemische von in dieser Tabelle aufgeführten radioaktiven Stoffen in Luft, die nicht analysiert, jedoch frei von Protactinium 231, natürlichem Thorium, Plutonium 239, Plutonium 240, Plutonium 242 und Californium 249 sind.	—	$7 \cdot 10^{-13}$
Gemische von in dieser Tabelle aufgeführten radioaktiven Stoffen in Luft, die nicht analy-		

Fortsetzung Tabelle IV.8.

Gemische	max. zulässige in Wasser [μCi/ml]	Konzentration in Luft [μCi/cm^3]
siert, jedoch frei von Actinium 227, Thorium 230, Protactinium 231, Thorium 232, natürlichem Thorium, Plutonium 238, Plutonium 239, Plutonium 240, Plutonium 242 und Californium 249 sind.	—	$1 \cdot 10^{-12}$
Gemische von in dieser Tabelle aufgeführten radioaktiven Stoffen in Luft, die nicht analysiert, jedoch frei von Alpha-Strahlern und Actinium 227 sind.	—	$1 \cdot 10^{-11}$
Gemische von in dieser Tabelle aufgeführten radioaktiven Stoffen in Luft, die nicht analysiert, jedoch frei von Alpha-Strahlern und von Blei 210, Actinium 227, Radium 228 und Plutonium 241 sind.	—	$1 \cdot 10^{-10}$
Gemische von in dieser Tabelle aufgeführten radioaktiven Stoffen in Luft, die nicht analysiert, jedoch frei von Alpha-Strahlern und von Strontium 90, Jod 129, Blei 210, Actinium 227, Radium 228, Protactinium 230, Plutonium 241 und Berkelium 249 sind.	—	$1 \cdot 10^{-9}$

IV.6. Richtlinien für kernchemische Laboratorien

Aus den Erfahrungen bei der Handhabung von Radionukliden und den gesetzlichen Bestimmungen resultieren allgemeine Richtlinien, die sich in den meisten kernchemischen Laboratorien als nützlich erwiesen haben. Diese Richtlinien betreffen die Einteilung der Räume in Meßräume, chemische Laboratorien und Lagerräume für Radionuklide, die Einrichtung der Laboratorien, die Handhabung der Radionuklide, die radioaktiven Abfälle, das Abwasser, die Abluft und die Strahlenschutzüberwachung. Sie richten sich in hohem Maße nach der Aktivität der Radionuklide, außerdem nach der Art der Strahlung. Man unterscheidet zweckmäßigerweise Laboratorien für niedrige Aktivitäten (Mikrocurie-Maßstab), Laboratorien für mittlere

Aktivitäten (Millicurie-Maßstab) und Laboratorien für hohe Aktivitäten (Curie-Maßstab).

Beim Umgang mit niedrigen Aktivitäten genügen normale chemische Laboratorien mit rillenfreien Fußböden, Tischen und Wänden sowie guter Raumentlüftung. Es ist sinnvoll, alle chemischen Operationen mit Radionukliden in Wannen auszuführen; für brennbare Abfälle stellt man beschriftete Eimer bereit, die einen Polyäthylensack enthalten, für flüssige radioaktive Abfälle größere beschriftete Flaschen. Da alle Operationen mit dem Mund wegen der Gefahr der Inkorporation untersagt sind, verwendet man z. B. Spezialpipetten. Die Wannen werden meist mit Papier ausgekleidet und die Laboratoriumstische gegebenenfalls zusätzlich mit Papier belegt. Zum Abwischen der Pipetten und dergleichen benutzt man Papiertaschentücher oder Papiermull. Der Labormonitor, der in jedem Laboratorium vorhanden sein soll, dient zum Nachweis von radioaktiven Stoffen in und an den Laborgeräten sowie zur Prüfung der Hände und der Arbeitskleidung auf Radioaktivität.

Beim Umgang mit mittleren Aktivitäten sind sorgfältige Strahlenschutzmaßnahmen erforderlich. Zum Beispiel sind Ferngreifzangen bereitzustellen, außerdem Bleiziegel, Bleiglasfenster und andere Teile zum Aufbau von „Bleiburgen“ für die Handhabung von γ-Strahlern bzw. Wände aus Plexiglas zur Abschirmung von β-Strahlern. Ferner ist die Benutzung von Gummihandschuhen zu empfehlen. Auch Dosimeter zur Messung der Dosisleistung sollen vorhanden sein. Für α-Strahler benutzt man Handschuhkästen, die für die betreffende chemische Operation eingerichtet sind und zu größeren Anlagen zusammengestellt werden können (vgl. Abschn. 12.5. und Abb. (12–17)). Die Behandlung des Abwassers und der radioaktiven Abfälle ist beim Umgang mit mittleren Aktivitäten ebenfalls von größerer Bedeutung; so müssen die Aufarbeitung des Abwassers und die Lagerung des radioaktiven Abfalls ins Auge gefaßt werden. Den Lagerräumen, der Raum- und Digestorienentlüftung, den Wascheinrichtungen sowie der Personen- und Laboratoriumskontrolle ist größere Aufmerksamkeit zu widmen. Die Gefahr der radioaktiven Verseuchung der Laboratorien ist im allgemeinen erheblich höher als die Strahlengefährdung der Mitarbeiter. Die Verseuchung der Laboratorien und Meßplätze führt dazu, daß keine brauchbaren Messungen niedriger Aktivitäten mehr möglich sind, weil alle Gegenstände mehr oder weniger stark mit radioaktiven Stoffen verseucht (kontaminiert) sind. Dieser Zustand muß durch sorgfältiges Arbeiten und regelmäßige Laboratoriums-

kontrollen unbedingt vermieden werden. Eine gesundheitliche Gefährdung der Mitarbeiter tritt im allgemeinen erst bei sehr viel höherer Kontamination und bei großer Nachlässigkeit ein.

Für die Handhabung hoher Aktivitäten sind Spezialeinrichtungen erforderlich. Zu diesem Zweck werden heiße Zellen errichtet und mit Geräten zur Fernbedienung ausgestattet (vgl. Abschn. 12.5. und Abb. (12–16)). Der Aufwand richtet sich nach der Aktivität und nach der Art der geplanten Arbeiten.

Kernchemische Operationen bedürfen einer sorgfältigen Vorbereitung. Die dafür erforderliche Zeit steigt im allgemeinen mit der Aktivität an. Alle Operationen sollen einfach und sicher sein. Dabei sind möglichst wenig Gefäße zu verwenden, um der Verschleppung der radioaktiven Stoffe vorzubeugen und die Reinigung zu erleichtern. Kochen radioaktiver Lösungen ist wegen der Gefahr des Versprühens unerwünscht. Geschlossene Gefäße sind vorzuziehen. Dem „aktiven" Versuch geht oft ein Blindversuch voraus. Die Reinigung der Gefäße erfolgt am zweckmäßigsten sofort nach Beendigung der Operationen, weil die Radionuklide allmählich in die Oberfläche von Glasgefäßen eindiffundieren und sich deshalb zu einem späteren Zeitpunkt oft nur sehr schwer entfernen lassen. Zur Dekontaminierung der Gefäße kann man eine Trägerlösung benutzen. Geräte, Arbeitsplatz, Hände und Kleidung sollen nach der Beendigung des Versuches sorgfältig auf Radioaktivität überprüft werden.

Hinsichtlich des Abwassers ergeben sich verschiedene Möglichkeiten: das radioaktive Abwasser kann in den Laboratorien in beschrifteten Flaschen gesammelt werden; dann ist eine Sortierung und selektive Aufarbeitung möglich. Es kann aber auch einer zentralen Abwasseranlage für radioaktive Abwässer zugeleitet und dort weiterverarbeitet werden. Alle anderen Abwässer aus kernchemischen Laboratorien sind möglicherweise radioaktiv — z. B. infolge eines Versehens; deshalb ist eine Überprüfung notwendig. Wenn die Auflage vorliegt, daß die Aktivität des Abwassers niedriger sein soll als der für Trinkwasser zugelassene Wert (10^{-7} μCi/ml, sofern es sich um ein unbekanntes Radionuklid handelt), sind sehr empfindliche Messungen erforderlich; denn 10^{-7} μCi/ml entspricht etwa der Radioaktivität von 0,1 mg K/ml. Zum Vergleich seien noch folgende Werte angeführt: Quellwasser enthält maximal etwa 10^{-4} μCi/ml, Flußwasser 10^{-8} μCi/ml und Regenwasser (infolge von Kernwaffenversuchen) 10^{-5} μCi/ml. Das sicherste Verfahren ist das Eindampfen einer Abwasserprobe von etwa 1 l und die Messung der Aktivität in einem Durchfluß-

zähler; dabei können bis zu etwa 10^{-10} μCi/ml an α- und β-Strahlern erfaßt werden.

Im Abluftsystem von kernchemischen Laboratorien sind Filter eingesetzt, die radioaktive Schwebstoffe und Dämpfe zurückhalten. Diese Filter müssen auf Radioaktivität geprüft und gelegentlich gereinigt bzw. erneuert werden. Auch eine kontinuierliche Überwachung der Abluft ist möglich, wobei die Radioaktvität durch einen Schreiber registriert wird.

Der radioaktive Abfall wird gesammelt, meist getrennt nach brennbaren und nicht brennbaren Bestandteilen. Abfälle mit sehr niedriger Aktivität können wie gewöhnliche Abfälle behandelt werden, solche mit höherer Aktivität, aber kurzer Halbwertzeit, lagert man zweckmäßigerweise so lange, bis die Aktivität abgeklungen ist; Abfälle, die langlebige Radionuklide enthalten, werden in Polyäthylensäcken eingeschweißt, in Tonnen gesammelt und einer zentralen Sammelstelle für radioaktive Abfälle zugeführt.

Literatur zu Anhang IV

1. D. Frost: Praktischer Strahlenschutz. Walter De Gruyter & Co., Berlin 1960.
2. W. Jacobi: Strahlenschutzpraxis. Tl. 1: Grundlagen. Thiemig Taschenbücher Bd. 5. Verlag Karl Thiemig KG, München 1962.
3. M. Oberhofer: Strahlenschutzpraxis. Tl. II: Meßtechnik. Thiemig Taschenbücher Bd. 6. Verlag Karl Thiemig KG, München 1962.
4. N. G. Gussew: Leitfaden für Radioaktivität und Strahlenschutz. Verlag Technik, Berlin 1957.
5. G. J. Hine, G. L. Brownell: Radiation Dosimetry. Academic Press, New York 1956.
6. K. K. Aglinzew: Dosimetrie ionisierender Strahlung. Deutscher Verlag der Wissenschaften, Berlin 1961.
7. B. Rajewsky: Strahlendosis und Strahlenwirkung. Verlag Georg Thieme, Stuttgart 1956.
8. B. Rajewsky: Wissenschaftliche Grundlagen des Strahlenschutzes. Verlag G. Braun, Karlsruhe 1957.
9. R. G. Jaeger: Dosimetrie und Strahlenschutz. Verlag Georg Thieme, Stuttgart 1959.
10. Th. Jaeger: Technischer Strahlenschutz. Verlag Karl Thiemig, München 1959.
11. Gesetz über die friedliche Verwendung der Kernenergie und den Schutz gegen ihre Gefahren (Atomgesetz) vom 23. 12. 1959 (BGBl. I, S. 814).
12. Erste Verordnung über den Schutz vor Schäden durch Strahlen radioaktiver Stoffe (Erste Strahlenschutzverordnung) vom 24. 6. 1960 (BGBl. I, S. 430).

Anhang V.
Häufiger verwendete Symbole

		Abschnitt	
A	Massenzahl	1.2.	
A	Gesamttrennfaktor (Gesamtanreicherung)	4.2.	Gl. (4.6)
A	Aktivität (Zerfallsrate)	5.4.	Gl. (5.14)
A_S	spezifische Aktivität	5.4.	Gl. (5.19)
a	Jahr		
ame	atomare Masseneinheit	1.6.	
BE	Bindungsenergie	1.5.	Gl. (1.2)
δBE	partielle Bindungsenergie	1.6.	Gl. (1.15)
B	Induktionsflußdichte (magnetische Kraftflußdichte)	4.6.	Gl. (4.10)
b	barn	8.6.	Gl. (8.61)
Ci	Curie	5.4.	Gl. (5.16)
D	Strahlendosis	10.3.	
DL	Dosisleistung	10.3.	Gl. (10.17)
d	Tag		
d	Schichtdicke	6.3.1.	Gl. (6.8)
$d_{1/2}$	Halbwertsdicke	6.4.1.	Gl. (6.15)
d	Deuteron		
E	Energie		
E_S	Schwellenenergie	5.2.	
e	elektrische Elementarladung		
f	Spaltung (fission)	8.8.	Gl. (8.110)
H	Magnetische Feldstärke	4.6.	
H	Häufigkeit	8.7.	Gl. (8.78)
h	Plancksches Wirkungsquantum	2.3.	Gl. (2.7)
h	Stunde		
I	Kernspin	2.4.	
I	Impulsrate	5.5.	Gl. (5.22)

		Abschnitt	
ipm	Impulse pro Minute	5.5.	Gl. (5.23)
I. U.	Isomere Umwandlung	5.2.	
K	Gleichgewichtskonstante	3.3.	Gl. (3.33)
K_d	Verteilungskoeffizient	13.3.	Gl. (13.21)
K_h	homogener Verteilungskoeffizient	13.4.	Gl. (13.31)
K_l	logarithmischer Verteilungskoeffizient	13.4.	Gl. (13.32)
k_B	Boltzmann-Konstante	3.2.	Gl. (3.22)
k	Dosisleistungskonstante	10.3.	Gl. (10.18)
LET	Energieverlust pro Wegeinheit („linear energy transfer")	10.3.	Gl. (10.19)
M	Nuklidmasse	1.6.	
δM	Massendefekt	1.6.	Gl. (1.12)
m	Masse	1.6.	Gl. (1.9)
m_0	Ruhemasse	1.6.	Gl. (1.9)
m_e	Masse des Elektrons	2.5.	Gl. (2.12)
min	Minute		
N	Zahl der Neutronen	1.3.	
N	Zahl der Atome	5.3.	Gl. (5.7)
N_L	Loschmidtsche Zahl (englisch „Avogadro number")	2.1.	Gl. (2.3)
n	Neutron		
P	Zahl der Protonen	1.3.	
p	Proton		
R	Gaskonstante	3.2.	Gl. (3.14)
R	Reichweite	6.2.1.	Gl. (6.4)
r_K	Kernradius	2.1.	Gl. (2.2)
RBW	relative biologische Wirksamkeit	IV.1.	Gl. (IV.2)
r	Röntgen	10.3.	
rad	Einheit der Strahlungsenergieabsorption (100 erg/g Absorber)	10.3.	Gl. (10.16)
rem	Röntgenäquivalent für den Menschen („roentgen equivalent man")	IV.1.	Gl. (IV.2)
rep	physikalisches Röntgenäquivalent („roentgen equivalent physical")	IV.1.	Gl. (IV.1)

		Abschnitt	
s	Sekunde		
s	Spallation (Kernsplitterung)	8.9.	
T_f	Trennfaktor	13.3.	Gl. (13.28)
t	Triton		
t	Zeit		
$t_{1/2}$	Halbwertzeit	5.3.	Gl. (5.9)
tps	Transmutationen pro Sekunde	5.4.	
Z	Ordnungszahl	1.2.	Gl. (1.1)
α	Austauschkoeffizient (Verteilungskoeffizient)	3.3.	Gl. (3.36)
α	Trennfaktor	4.2.	Gl. (4.3)
α	Alphateilchen		
β	Betateilchen (β^- Elektron, β^+ Positron)		
γ	Gammaquant		
η	Zählausbeute	5.5.	Gl. (5.22)
λ	Zerfallskonstante	5.3.	Gl. (5.7)
λ	Austauschgrad	15.5.3.	Gl. (15.22)
μ	reduzierte Masse	3.1.	Gl. (3.4)
μ	Absorptionskoeffizient	6.3.1.	Gl. (6.8)
μ_B	Bohrsches Magneton	2.5.	Gl. (2.12)
μ_K	Kernmagneton	2.5.	Gl. (2.13)
ν	Neutrino	7.1.2.	Gl. (7.4)
$\bar{\nu}$	Antineutrino	7.1.2.	Gl. (7.3)
ν	Zahl der bei der Spaltung freiwerdenden Neutronen	7.1.4.	Gl. (7.17)
σ	Standardabweichung	6.5.5.	Gl. (6.37)
σ	Wirkungsquerschnitt	8.6.	Gl. (8.60)
Σ	makroskopischer Wirkungsquerschnitt	8.6.	Gl. (8.67)
τ	Isospin	2.2.	
τ	mittlere Lebensdauer	5.3.	Gl. (5.12)
Φ	Flußdichte	8.6.	Gl. (8.60)

Anhang VI.
Lösungen der Übungsaufgaben

Kapitel 1

3. Anleitung: Vergleich der isobaren Nuklide mit den Ordnungszahlen Z = 60, 61 und 62.
5. Molekulargewicht des Oxids 310; 7. Nebengruppe des Periodensystems; Ähnlichkeit mit dem Rhenium; A ≈ 99.
7. Al–27, J–127 und Hg–204.
8. 1,0078214; 2,0140950; 15,9949076.
9. a) Proton: Faktor 1,0009; b) Elektron: Faktor 4,15.
10. a) Deuteron: 1,11 MeV; b) α-Teilchen: 7,07 MeV.
11. 15,96 MeV; 12,85 MeV; 8,34 MeV; 10,32 MeV.
12. 1,409 MeV.

Kapitel 2

2. $T = 0$; $T = 10\frac{1}{2}$; $T = 27$.
3. 1/931,48 ame bzw. $1{,}78 \cdot 10^{-27}$ g.
4. $I = 0$ (g, g-Kerne).
5. Anleitung: $i(\text{Proton}) = i(\text{Elektron}) = \frac{1}{2}\frac{h}{2\pi}$.
6. $a : b = 1{,}29 : 1$.

Kapitel 3

1. $p_{H_2O}/p_{D_2O} = 1{,}153$ (20 °C) bzw. 1,051 (100 °C).
2. 1,154553 bzw. 1,000758.
3. $k_1/k_1' \approx 1{,}0061$.
4. $K \approx 2{,}43$; $K' \approx 2{,}44$.

Kapitel 4

1. Mindestzahl der erforderlichen Stufen 1663; Gesamtanreicherung 1241.
2. 1,225 bzw. 1,0308.
3. $r = 17{,}5$ cm bzw. 18,9 cm.
4. 1 cm [r(Pu–239) = 60,95 cm, r(Pu–242) = 61,43].
5. $\alpha = 1{,}0806$; dies entspricht 18,1 Stufen einer Gasdiffusionsanlage.
6. a) 257; b) 14,1.
7. 30,8.
8. 126.
9. 31,4 °C.

Kapitel 5

1. 94,8 keV bzw. 4,27 MeV.
2. 734.
3. $1{,}04 \cdot 10^{-4}$ g; $2{,}24 \cdot 10^{-1}$ g; $1{,}15 \cdot 10^{-7}$ g; $2{,}36 \cdot 10^{-5}$ g; $8{,}07 \cdot 10^{-6}$ g.
4. $3{,}33 \cdot 10^{-7}$ Ci/g; $2{,}32 \cdot 10^{4}$ Ci/g; $6{,}87 \cdot 10^{8}$ Ci/g; $6{,}18 \cdot 10^{-3}$ Ci/g.
5. $1{,}66 \cdot 10^{-2}$ Ci/mg; $1{,}80 \cdot 10^{3}$ Ci/mg; $3{,}83 \cdot 10^{4}$ Ci/mg; $1{,}42 \cdot 10^{-6}$ Ci/mg; $3{,}33 \cdot 10^{-10}$ Ci/mg.
6. a) $1{,}11 \cdot 10^{5}$ ipm; b) 666 ipm.
7. 25,8 min (J–128); 2,32 h (J–132 oder Br–83); Verhältnis der Anfangsimpulsraten 10000 : 10000.
8. $1{,}39 \cdot 10^{10}$ a.
9. $1{,}79 \cdot 10^{-4}$ mg.
10. $1{,}013 \cdot 10^{-5}$ mg.
11. 6,64 bzw. 0,87.
12. nach 428 d; maximale Aktivität des Nb–95 nach 67,7 d.
13. a) 160 d; b) 54,2 h.
14. Anleitung: vgl. Abb. (5–13) — mehrere aufeinanderfolgende Umwandlungen.

15. Partielle Zerfallskonstanten $0{,}69 \cdot 10^{-4}\ s^{-1}$ bzw. $1{,}22 \cdot 10^{-4}\ s^{-1}$; zu Beginn $7{,}99 \cdot 10^4$ α-Zerfälle/min und $1{,}42 \cdot 10^5$ β-Zerfälle/min; nach 3 h $1{,}02 \cdot 10^4$ α-Zerfälle/min und $1{,}82 \cdot 10^4$ β-Zerfälle/min.
16. Mengenverhältnis $2{,}66 \cdot 10^{-8}$; Aktivitätsverhältnis $1{,}4 \cdot 10^{-2}$.

Kapitel 6

1. 800 mg/cm^2 (P–32); 195 mg/cm^2 (Sr–90); 1070 mg/cm^2 (Y–90); 1150 mg/cm^2 (Pa–234m).
2. Cs–137.
3. $2{,}97 \cdot 10^{10}$ cm/s.
4. 15,5%.
5. 0,169 bzw. 0,0278.
6. 200 Watt.
7. 600 μs.
8. $\eta = 0{,}054$.
9. a) und b) flüssige Szintillatoren oder Gaszählrohr; c) Proportionalzähler (dünne Präparate) oder flüssige Szintillatoren; d) Szintillationszähler oder Kristallzähler.
10. $\sigma = \pm 10$; $\pm 31{,}6$; ± 100; ± 316; Fehler 10%; 3,2%; 1%; 0,32%.

Kapitel 7

1. nein; nein; nein; ja; nein; ja; nein; ja.
2. 1,88 MeV.
3. 57,5% der Lichtgeschwindigkeit; $1{,}06 \cdot 10^{-10}$ cm bzw. $9{,}32 \cdot 10^{-11}$ cm.
4. $\lg ft = 2{,}5$, begünstigt; $\lg ft = 9{,}0$, erlaubt (l-verboten); $\lg ft = 8{,}1$, erlaubt (l-verboten); $\lg ft = 4{,}8$, erlaubt (normal).
5. 4,01 (gemessen 83% K; 15% β^+); 1,66 (gemessen 43% K; 19% β^+); 0,74 (gemessen 52% K; 46% β^+); 0,82 (gemessen $\approx$ 50% K; $\approx$ 50% β^+).
6. Br–80m $5{,}3 \cdot 10^{-6}\ s^{-1}$ und $1{,}4 \cdot 10^{11}\ s^{-1}$; Rb–81m $2{,}1 \cdot 10^{-2}\ s^{-1}$; Ce–139m $1{,}3 \cdot 10^{-2}\ s^{-1}$.
7. $2{,}57 \cdot 10^{-10}\ s^{-1}$ bzw. $8{,}03 \cdot 10^{-9}\ s^{-1}$.

Kapitel 8

2. | | |
|---|---|
| + 6,984 MeV | + 8,028 MeV |
| + 0,615 MeV | − 1,625 MeV |
| − 10,43 MeV | − 18,72 MeV |
| − 1,64 MeV | − 8,506 MeV |
| + 0,56 MeV | + 1,269 MeV |

4. z. B. $^{19}F(n, 2n)^{18}F$; $^{19}F(\gamma, n)^{18}F$; $^{16}O(t, n)^{18}F$; $^{18}O(p, n)^{18}F$.
5. | | |
|---|---|
| $^{35}Cl(n, \gamma)^{36}Cl$ | $^{85}Rb(\gamma, 2n)^{83}Rb$ |
| $^{37}Cl(\gamma, n)^{36}Cl$ | $^{84}Sr(\gamma, n)^{83}Sr \xrightarrow{\beta^+} {}^{83}Rb$ |
| $^{59}Co(\gamma, n)^{58}Co$ | $^{146}Nd(n, \gamma)^{147}Nd \xrightarrow{\beta^-} {}^{147}Pm$ |
| $^{59}Co(n, \gamma)^{60}Co$ | $^{197}Au(p, n)^{197}Hg$ |

6. a) $1{,}81 \cdot 10^{-8}$ cm (193,5 °K);
   b) $2{,}86 \cdot 10^{-11}$ cm ($7{,}74 \cdot 10^{7}$ °K);
   c) $9{,}04 \cdot 10^{-13}$ cm ($7{,}74 \cdot 10^{10}$ °K).
7. | | |
|---|---|
| 3,02 MeV | 12,42 MeV |
| 2,57 MeV | 10,47 MeV |
| 5,04 MeV | 12,96 MeV |
| 18,72 MeV | 10,41 MeV |

8. 3,5 MeV bzw. 22 MeV.
9. a) $^{59}Co(n, \gamma)^{60m}Co \xrightarrow[10{,}5\ \text{min}]{\text{I.U.}} {}^{60}Co$

   $^{59}Co(n, \gamma)^{60}Co$

   b) 56,19 Ci
   c) 10,23 Ci/g
   d) 285 d.
10. 97,4 b.
11. $3{,}993 \cdot 10^{-6}$ g ($3{,}706 \cdot 10^{-3}$ Ci/g);
    nach einer Woche $1{,}004 \cdot 10^{-5}$ g ($9{,}315 \cdot 10^{-3}$ Ci/g).
12. $1{,}07 \cdot 10^{-9}$ g ($3{,}58 \cdot 10^{-6}$ Ci/g).
13. Deuterium-Zyklus: 0,420 MeV; 5,494 MeV; 12,86 MeV;
    Kohlenstoff-Stickstoff-Zyklus: 3,143 MeV; 7,549 MeV;
    9,03 MeV; 4,965 MeV.

Kapitel 9

1. 71,8 keV.
2. 8,26 eV ≙ 190,38 kcal/Mol; ja.

3. 0,063 eV.
4. 394 eV.
5. 17,2 keV.
6. 523 keV bzw. 71 keV.
7. $TeO_4^{--} \xrightarrow{\beta^-} (JO_4^-)$; maximale Rückstoßenergie 1,39 eV $\triangleq$ 32,1 kcal/Mol (Energie der Bindung Te – 0 > 60 kcal/Mol); Differenz der Bindungsenergie der Elektronen für ein freies Telluratom und ein freies Jodatom 4,8 keV: infolgedessen Anregungsenergie einige 100 eV; wahrscheinlich Übergang des J in niedere Oxydationsstufen.
8. $^{35}Cl(n,p)^{35}S$; $^{34}S(n,\gamma)^{35}S$ und Ausnutzung des Szilard-Chalmers-Effektes (z. B. durch Bestrahlung in CS_2, organischen Sulfiden, Sulfaten).
9. S–35: 0,749 keV $\triangleq$ $1,73 \cdot 10^4$ kcal/Mol $\triangleq$ $8,69 \cdot 10^6$ °K; C–14: 42,1 keV $\triangleq$ $9,70 \cdot 10^5$ kcal/Mol $\triangleq$ $4,88 \cdot 10^8$ °K; d. h. die chemischen Bindungen werden in beiden Fällen gesprengt.
10. 167600 ipm.
11. 70,6 d.

Kapitel 10

1. $1,2 \cdot 10^3$ rad/h.
2. 4,0.
3. $2,1 \cdot 10^4$ rad/h.

Kapitel 11

1. 210,66 MeV und 174,38 MeV.
2. D_2O > C > Be–9 > H_2O.
3. a) 2,04; b) 40 cm.
4. 89,7 d.
5. a) $7,5 \cdot 10^{10}$ Ci; b) $6 \cdot 10^7$ Ci; c) $3 \cdot 10^6$ Ci.
6. $1,26 \cdot 10^6$ Ci; 8,91 kg.
7. $2,59 \cdot 10^7$ Ci.
8. 2,35 g.
9. 3,82 kg; 13,26 g.

Kapitel 12

1. a) A_S (B–12) = 4,06 Ci/g; b) A_S (B–12) = 6,05 Ci/g.
2. 16,38 bzw. 0,996.
3. 50 (2-malige Beschleunigung während eines Umlaufes).
4. $2{,}3 \cdot 10^8\ \text{cm}^{-2}\ \text{s}^{-1}$.

Kapitel 13

1. Cu–64: 95,3 mCi/g; S–35: 5,45 μCi/g (bezogen auf wasserfreies $CuSO_4$).
2. P–32: 5,54 μCi/g; Fe–59: 0,25 μCi/g.
3. 0,326 mCi.
4. a) 81,1%; b) 97,2%.
5. a) 88,4%; b) 99,59%; c) 99,999%.
6. a) $2{,}69 \cdot 10^{-2}$ mCi/g Chlor; b) $9{,}55 \cdot 10^{-4}$ mCi/mMol.

Kapitel 14

1. Aus Spaltproduktlösungen (Extraktion; Destillation des Tc_2O_7); durch Kernreaktionen, z. B.

$$^{98}\text{Mo}(n,\gamma)^{99}\text{Mo} \xrightarrow[67\ \text{h}]{\beta^-} {}^{99m}\text{Tc} \xrightarrow[6{,}0\ \text{h}]{\text{I.U.}} {}^{99}\text{Tc};$$

$$^{98}\text{Mo}(p,n)^{98}\text{Tc};$$

$$^{96}\text{Ru}(n,\gamma)^{97}\text{Ru} \xrightarrow[2{,}9\ \text{d}]{\text{K}} {}^{97m}\text{Tc} \xrightarrow[90\ \text{d}]{\text{I.U.}} {}^{97}\text{Tc}.$$

2. $^{237}\text{Np}(n,\gamma)^{238}\text{Np} \xrightarrow[2{,}1\ \text{d}]{\beta^-} {}^{238}\text{Pu}$; $^{239}\text{Pu}(n,2n)^{238}\text{Pu}$;

$$^{238}\text{U}(d,2n)^{238}\text{Np} \xrightarrow[2{,}1\ \text{d}]{\beta^-} {}^{238}\text{Pu}.$$

3. $1{,}68 \cdot 10^{-3}$ g.
4. Pu–244: $^{238}\text{U}(\alpha,\gamma)^{242}\text{Pu}(n,\gamma)^{243}\text{Pu}(n,\gamma)^{244}\text{Pu}$;

$$^{244m}\text{Am} \xrightarrow[26\ \text{min}]{\text{K}} {}^{244}\text{Pu};$$

$$^{238}\text{U}(\alpha,n)^{241}\text{Pu} \xrightarrow{3 \times (n,\gamma)} {}^{244}\text{Pu};$$

Cm–244: $^{239}\text{Pu}(n,\gamma)^{240}\text{Pu}(\alpha,\gamma)^{244}\text{Cm}$;
$^{240}\text{Pu}(n,\gamma)^{241}\text{Pu}(\alpha,n)^{244}\text{Cm}$;

$$^{243}Pu(d,n)^{244}Am \xrightarrow[10{,}1\ h]{\beta^-} {}^{244}Cm;$$

$$^{242}Pu(n,\gamma)^{243}Pu \xrightarrow[4{,}98\ h]{\beta^-} {}^{243}Am(n,\gamma)^{244}Am \xrightarrow[10{,}1\ h]{\beta^-} {}^{244}Cm.$$

5. a) Mg-Ionen ($E \geqslant 124$ MeV) $^{239}Pu + {}^{24}Mg \longrightarrow {}^{263-x}106 + x\,n$;
   b) Ne-Ionen ($E \geqslant 107$ MeV) $^{244}Cm + {}^{20}Ne \longrightarrow {}^{264-x}106 + x\,n$.
6. z. B.: Es + C $\longrightarrow$ 105; Np + Mg $\longrightarrow$ 105; Ähnlichkeit mit Ta.

Kapitel 15

1. 0,89‰.
2. 2,1 min.
3. 1,75 g H_3PO_4.
4. $1{,}71 \cdot 10^{-3}$ μCi/g.
5. $4{,}42 \cdot 10^{-8}$ mg ($4{,}42 \cdot 10^{-4}$ ppm).
6. a) Bestrahlung mit Neutronen (3 – 6 h); Messung des Cl–38; Nachweisgrenze $6{,}01 \cdot 10^{-10}$ g.

   b) Bestrahlung mit 14 MeV Neutronen (10 – 30 s); Messung der γ-Strahlung des N–16 — oder Bestrahlung mit Tritonen (einige h); Messung der β^+-Strahlung des F–18 bzw. der Vernichtungsstrahlung.

   c) Bestrahlung mit Neutronen (einige d); Trennung Fe/Zr (Zr wird ebenfalls verhältnismäßig stark aktiviert); Messung des Fe–59; Nachweisgrenze $2{,}66 \cdot 10^{-7}$ g.
7. $3{,}18 \cdot 10^4$ cm^2.
8. $1{,}54 \cdot 10^9$ a.
9. $8{,}4 \cdot 10^7$ a.

Allgemeine Literaturhinweise

1. Handbücher

Landolt-Börnstein

Zahlenwerte und Funktionen aus Naturwissenschaften und Technik, Gruppe I–VI. Gesamtherausgabe: K. H. HELLWEGE. Springer-Verlag, Berlin-Göttingen-Heidelberg 1961 ff.

Zahlenwerte und Funktionen aus Physik, Chemie, Astronomie, Geophysik und Technik, 6. Aufl., Bd. I–III. Hrsg. A. EUCKEN, K. H. HELLWEGE. Springer-Verlag, Berlin-Göttingen-Heidelberg, 1950 ff.

Handbuch der Physik

Gruppe I ff. Hrsg. S. FLÜGGE. Springer-Verlag, Berlin-Göttingen-Heidelberg 1955 ff.

Nuclear Data Sheets

The National Academy of Science – National Research Council, Washington 1954–1965.

Nuclear Data

Section A, NewYork–London; **1** (1965) ff.

Nuclear Data

Section B, NewYork–London; **1** (1966) ff.

Table of Isotopes

Hrsg. C. M. LEDERER, J. M. HOLLANDER u. I. PERLMAN: 6. Aufl., John Wiley and Sons, New York 1967.

Monographs on the Radiochemistry of the Elements

Hrsg. W. W. MEINKE: Subcommittee on Radiochemistry, National Academy of Sciences. National Research Council.
Nuclear Science Series NAS–NS 3001 – 3058 u. ff.

Activation Analysis Handbook

Hrsg. R. C. KOCH. Academic Press, New York 1960.

Handbuch der Mikrochemischen Methoden

Band I–IV. Hrsg. FR. HECHT, M. K. ZACHERL. Springer-Verlag, Wien 1954–1966.

Cinda

EANDC 60 „U" NYO–72–107 CCDN–Cl/11, An Index to the Literature on Microscopic Neutron Data. ENEA Neutron Data Compilation Centre, Juli 1966; Supplement 1, EANDC 66 „U" CCDN–Cl/13, TID 23357, Oktober 1966; Supplement 2, EANDC 70 „U" CCDN–Cl/75, TID 23702, März 1967.

Neutron Cross Sections for Fast Reactor Materials

Part III: Graphs, KFK 120 (EANDC–E–35 U). Hrsg. J. J. SCHMIDT. Kernreaktor Bau- und Betriebs-Gesellschaft m.b.H. Karlsruhe, 1962.

2. Zeitschriften

Nuclear Science Abstracts

Oake Ridge, Tenn., USA, **1** (1948) ff.

Radiochimica Acta

Frankfurt; **1** (1962) ff.

Nucleonics

New York; **1** (1947) ff.

Journal of Inorganic and Nuclear Chemistry

Oxford; **1** (1955) ff.

Inorganic and Nuclear Chemistry Letters

Oxford; **1** (1965) ff.

International Journal of Applied Radiation and Isotopes

London; **1** (1956/57) ff.

Journal of Labelled Compounds

Brüssel; **1** (1965) ff.

Kerntechnik, Isotopentechnik und -chemie

München; **1** (1959) ff.

Nukleonik

Berlin; **1** (1958) ff.

Atomwirtschaft

Düsseldorf; **1** (1956) ff.

Atompraxis

Karlsruhe; **1** (1955) ff.

3. Übersichtsartikel (Reviews)

Annual Review of Nuclear Science

Palo Alto; **1**; 1952 ff.

Annual Review of Physical Chemistry

Palo Alto; **1**; 1950 ff.

Atomic Energy Review

Wien; **1**, 1963 ff.

Advances in Inorganic Chemistry and Radiochemistry

Vol. 1 (1959) ff. Hrsg.: H. J. EMELÉUS, A. G. SHARPE, Academic Press, New York.

Progress in Nuclear Energy

Series I – Series XII. Pergamon Press, London, 1956 ff.

Technical Reports Series

IAEA, International Atomic Energy Agency, Wien, 1960 ff.

Review Series

IAEA, International Atomic Energy Agency, Wien, 1960 ff.

Safety Series

IAEA, International Atomic Energy Agency, Wien, 1961 ff.

Bibliographical Series

IAEA, International Atomic Energy Agency, Wien, 1961 ff.

Physical Review

New York, Ser. II: **1**, 1913 ff.

4. Berichte von Konferenzen und Symposien

Proceedings of the First International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, Genf 1955.

Proceedings of the Second International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, Genf 1958.

Proceedings of the Third International Conference on the Peaceful Uses of Atomic Energy, Genf 1964.

Proceedings von Symposien, IAEA, International Atomic Energy Agency, Wien, 1959 ff.

Quellenverzeichnis

Mit freundlicher Genehmigung wissenschaftlicher Gesellschaften als Inhaber bzw. Verwalter der Urheber- und Verlagsrechte sind aus den folgenden Publikationen nachstehend bezeichnete Bilder und eine Tabelle entlehnt worden.

Balke, S.: Kernkraftwerke und Industrie. Bad Godesberg 1966.
(11–11)
genehmigt durch das Deutsche Atomforum e.V., Bonn.

Schmidt, J. J.: Neutron Cross Sections for Fast Reactor Materials, Part III. Karlsruhe 1962.
Tab. (11–4)
genehmigt durch Gesellschaft für Kernforschung m.b.H., Karlsruhe.

Physical Review
(6–4), (6–6), (6–8), (6–14), (7–2), (7–13), (7–14), (7–18), (7–19), (7–29), (8–8), (8–16), (9–12), (13–1)
genehmigt durch American Institute of Physics, New York; Brookhaven National Laboratory, Brookhaven.

Proceedings Series, Chemical Effects of Nuclear Transformations, Vol. I. Wien 1961.
(9–10)
genehmigt durch International Atomic Energy Agency, Wien.

Namenregister

Sachregister

*) Die mit Sternchen gekennzeichneten Seitenzahlen weisen auf Abbildungen hin.